N° d'ordre : 144

THÈSE

PRÉSENTÉE DEVANT

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX I

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

Michel UHLRICH

INGÉNIEUR E. N. S. C. B.

Contribution à l'étude de la magnétorésistance dans les solides non-cristallins.

Soutenue le 15 juillet 1971, devant la Commission d'Examen :

M. A. PACAULT	Membre correspondant de l'Institut, Professeur..	*Président.*
M. A. MARCHAND	Professeur.....	*Examinateurs.*
M. P. DELHAÈS	Maître de Recherches au C.N.R.S.....	
M. H. GASPAROUX	Docteur ès Sciences.....	

— 1971 —

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543509_0023

N° d'ordre : 144

THÈSE

PRÉSENTÉE DEVANT

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX I

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

Michel UHLRICH

INGÉNIEUR E. N. S. C. B.

Contribution à l'étude de la magnétorésistance dans les solides non-cristallins.

Soutenue le 15 juillet 1971, devant la Commission d'Examen :

M. A. PACAULT	Membre correspondant de l'Institut, Professeur..	*Président.*
M. A. MARCHAND	Professeur.....	*Examinateurs.*
M. P. DELHAÈS	Maître de Recherches au C.N.R.S.....	
M. H. GASPAROUX	Docteur ès Sciences.....	

— 1971 —

N° d'ordre : 181

A MA FEMME

A MES PARENTS

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

AVANT - PROPOS

Ce travail a été réalisé au Centre de Recherches Paul Pascal dirigé par Monsieur le Professeur PACAULT. Nous lui devons d'avoir pu entreprendre cette étude et sommes heureux de lui apporter le témoignage de notre respectueuse reconnaissance.

Monsieur le Professeur MARCHAND a bien voulu participer au jury de cette thèse. Q'il soit assuré de notre sincère gratitude.

Monsieur DELHAES, Maître de Recherches au C.N.R.S, a dirigé ce travail ; son aide constante et amicale, ses critiques bienveillantes nous furent toujours d'un grand secours. Nous tenons à lui exprimer ici notre profonde reconnaissance.

Monsieur GASPAROUX, Docteur ès Sciences,a pour une large part collaboré à l'élaboration de ce travail. Nous le remercions vivement pour les critiques et les conseils toujours très précieux ainsi que l'interêt qu'il a porté à ces recherches.

Que tous nos camarades chercheurs et techniciens,plus particulièrement Monsieur BABAGBETO, soient ici remerciés pour l'aide amicale et sympathique qu'ils nous ont toujours apportée.

CONTRIBUTION à l'ETUDE de la MAGNETORESISTANCE

dans les SOLIDES NON-CRISTALLINS

- SOMMAIRE -

INTRODUCTION 1

Iere Partie - RAPPELS GENERAUX 3

I-1 THEORIE GENERALE DES PHENOMENES DE TRANSPORT 3

I-1-1 - Théorie phénoménologique des propriétés galvanomagnétiques : résistivité, effet Hall et magnétorésistance. 3

a) Définition des propriétés de transport dans l'approximation des champs faibles. 3

b) Etude d'une substance de structure hexagonale appartenant au au groupe de points D_{6h} (ou 6/mmm) 7

c) Méthode expérimentale de détermination des coefficients galvanomagnétiques. 11

I-1-2 - Les modèles en physique du solide 17

a) Application d'un champ électrique 18

b) Application simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique. 18

I-2 NOTIONS DE MAGNETORESISTANCE NEGATIVE 23

I-2-1 Classification Générale 23

a) Echantillons inhomogènes 23

b) Echantillons homogènes 24

I-2-2 Interprétation de la magnétorésistance négative dans les solides homogènes. 24

a) Variation du nombre de porteurs avec l'induction magnétique. 24

b) Augmentation de la mobilité des porteurs. 26

- Théorie de TOYOZAWA

I-3- ETUDE CRITIQUE DE LA BIBLIOGRAPHIE 31

I-3-1 Définitions 32

a) Les pyrocarbones 32

b) Les paramètres expérimentaux 32

I-3-2 Résultats obtenus par les divers auteurs 33

a) Evolution du signe de la magnétorésistance en fonction de HTT et de T. 33

b) Allure de la variation en fonction de l'induction magnétique 33

c) Remarques sur les interprétations 35

d) Anisotropie de la magnétorésistance 36

I-3-3 Définition de la présente recherche 37

IIème Partie - ETUDE EXPERIMENTALE 41

II-1 - ETUDE PRELIMINAIRE : CHOIX DE L'ECHANTILLON 41

II-2 - TECHNIQUE EXPERIMENTALE 45

II-2-1 Mesures aux inductions magnétiques élevées 45

II-2-2 Mesures aux faibles inductions magnétiques 47

II-2-3 Variation et mesure de la température 50

II-3-RESULTATS EXPERIMENTAUX 51

II-3-1 Variations thermiques de la résistivité électrique et de l'effet Hall. 51

II-3-2 Variations thermiques de la magnétorésistance 51

A - Mesures à inductions fortes 51

B - Variation thermiques pour B≤11 KGauss 60

II-3-3 - Figures de rotation 60

A - Figure de rotation $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ 61

B - Figure de rotation $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho'_{\perp}}{\rho_o}$ 74

IIIème Partie : EXPLOITATION DES RESULTATS ET INTERPRETATION 75

III-1 - RELATION ENTRE LES GRANDEURS THEORIQUES ET EXPERIMENTALES DE LA MAGNETORESISTANCE POSITIVE. 75

III-2 - ESSAI D'INTERPRETATION DE LA MAGNETORESISTANCE TRANSVERSE POSITIVE. 78

III-2-1 Calcul de la mobilité moyenne des porteurs de charge libres. 79

III-2-2 Evaluation "a priori" de la magnétorésistance transverse positive. 83

III-2-3 Paramétrage de la variation de la magnétorésistance transverse positive en fonction de l'induction magnétique. 85

III-2-4 Analyse de la variation thermique de la magnétorésistance positive transverse. 89

III-2-5 Remarques sur la magnétorésistance longitudinale positive. 91

III - 3 ANALYSE DES FIGURES DE ROTATION 93

III-3-1 Figures de rotation à inductions magnétiques fortes. 93

III-3-2 Figures de rotation à induction magnétique très faible. 95

III-3-3 Figures de rotation à inductions magnétiques moyennes. 97

III-3-4 Commentaire sur l'anisotropie de la magnétorésistance négative. 100

III - 4 INTERPRETATION DES VARIATIONS THERMIQUES DE LA MAGNETORESISTANCE NEGATIVE. 100

III-4-1 Analyse de la magnétorésistance négative dans l'approximation des champs faibles. 101

III-4-2 Analyse de la magnétorésistance négative en fonction de l'induction magnétique. 105

III-4-3 Relation entre la théorie de TOYOZAWA et la forme des bandes d'énergie. 109

III-4-4 Conclusion sur la magnétorésistance négative. 110

CONCLUSION 113

BIBLIOGRAPHIE. 115

- INTRODUCTION -

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'études effectuées au Centre de Recherches Paul Pascal depuis quelques années sur les solides non cristallinsparmi lesquels on peut classer la famille des carbones.

Ces matériaux sont obtenus de la façon suivante : la carbonisation d'une substance organique aboutissant à une substance amorphe est suivie de l'opération irréversible de la graphitisation produite par un traitement thermique à haute température (T variant de 1000° à 3200°C). On aboutit selon les cas à une substance de structure plus ou moins proche de celle du graphite.

Les propriétés de transport à l'équilibre thermique, c'est-à-dire la résistivité, la magnétorésistance et l'effet Hall sont parmi les plus caractéristiques de la structure électronique de ces matériaux.

Depuis une quinzaine d'année, beaucoup d'études de ces propriétés ont été faites sur diverses familles de carbones. En particulier, la magnétorésistance, variation relative de résistance en présence de champ magnétique, qui peut être positive ou négative, a été examinée à de nombreuses reprises. L'allure générale du phénomène est bien connue, cependant en ce qui concerne l'étude de la composante négative de la magnétorésistance, une analyse quantitative des résultats n'a jamais été effectée complètement.

L'idée de base de ce travail a été d'étudier en fonction de tous les paramètres disponibles, un seul échantillon convenablement choisi. Pour ce faire, nous avons utilisé un pyrocarbone dont la température de dépôt est égale à 2100°C. Nous avons retraité un certain nombre d'échantillons à des tempé-

ratures (HTT) différentes afin de choisir celui qui présenterait les caractéristiques suivantes :

- être macroscopiquement homogène
- posséder un degré de cristallinité suffisant de manière à présenter à très basse température, une magnétorésistance positive nettement plus importante à fort champ magnétique que la magnétorésistance négative observée à faible champ magnétique.

Ainsi, à forts ou à faibles champs magnétiques nous aurons une prédominance soit de la magnétorésistance positive soit de la magnétorésistance négative qui devrait permettre de les analyser séparément. Par contre, dans le domaine des champs magnétiques intermédiaires nous devrions observer une superposition des deux phénomènes. Cette observation conduit à poser le problème de l'additivité des deux composantes de la magnétorésistance que l'on pourra adopter en première hypothèse. Mais afin de le vérifier, il faut dans un premier temps, étudier séparément leurs théories respectives.

Par conséquent, nous serons amenés tout d'abord à développer la théorie phénoménologique de la magnétorésistance positive dans le cas du monocristal de graphite et à présenter quelques théories pouvant expliquer la magnétorésistance négative caractéristique des solides non cristallins. Après une revue bibliographique nous serons à même de préciser l'objet de ce travail ; nous présenterons alors l'appareillage utilisé ainsi que nos résultats expérimentaux. Dans une dernière partie, nous tenterons de dégager une interprétation de cesrésultats. En particulier, nous essaierons d'interpréter la magnétorésistance négative dans le cadre d'une théorie générale valable pour d'autres substances conductrices (théorie de Toyozawa) plutôt que d'utiliser un modèle spécifique au carbone considéré.

- 1ère Partie -

RAPPELS GENERAUX

I-1 - THEORIE GENERALE DES PHENOMENES DE TRANSPORT

I.1.1 - Théorie phénoménologique des propriétés galvanomagnétiques : résistivité, effet Hall et magnétorésistance -

Nous allons développer la théorie phénoménologique des propriétés de transport à l'équilibre thermique dans un cadre général. Ensuite nous examinerons plus particulièrement le cas d'un monocristal de structure hexagonale en précisant la détermination expérimentale des coefficients définissant les caractéristiques de ces propriétés.

a) Définition des propriétés de transport dans l'approximation des champs faibles

Considérons le phénomène de conduction électrique d'un échantillon isotherme en présence d'un champ magnétique* (donc en l'absence d'effets thermomagnétiques).

A partir de la thermodynamique linéaire des processus irréversibles on montre que l'on peut écrire la loi d'ohm sous la forme générale suivante (1)(2) :

$$J_i = \sigma_{ij}(\vec{B})\, E_j \qquad (1)$$

J_i : densité de courant électrique
$\vec{B}$: induction magnétique
E_j : champ électrique
$\sigma_{ij(\vec{B})}$: tenseur de conductivité en présence de champ magnétique.

---

* Remarquons que l'on applique un champ magnétique mais que c'est l'induction magnétique qui intervient en fait dans le calcul

$$\vec{B} = \mu_o \vec{H}$$

μ_o = perméabilité magnétique

Réciproquement on définit le tenseur de résistivité $\rho_{ij}(\vec{B})$:

$$E_i = \rho_{ij}(\vec{B})\ J_j \qquad (2)$$

que nous allons utiliser ici car il correspond aux conditions expérimentales usuelles. On fixe en effet la densité de courant traversant l'échantillon et on mesure la différence de potentiel existant en présence d'un champ magnétique extérieur.

Afin d'exploiter les différents termes du tenseur de résistivité $\rho_{ij}(\vec{B})$ on peut le développer, si l'induction magnétique n'est pas trop grande en séries des composantes de l'induction magnétique extérieure B ; il vient (3,4) :

$$E_i = \rho^o_{ij}\ J_j + R_{ijk}\ B_k\ J_j + A_{ijkl} B_k\ B_l\ J_j + T_{ijklm}\ B_k\ B_l\ B_m\ J_j + \ldots\ldots \quad (3)$$

Remarques :

1 - Dans cette expression on utilise la convention habituelle d'Einstein qui indique que la sommation doit être effectuée sur toutes les valeurs possibles de tous les indices répétés (k, l, m, n = 1, 2, 3)

2 - Il faut demeurer dans l'approximation des champs faibles. En terme de physique du solide cela s'exprime par $\mu B < 1$ où μ est la mobilité du porteur de charge responsable de la conduction électrique (1).

3 - Comme tout tenseur d'ordre 2 le tenseur de résistivité $\rho_{ij}(\vec{B})$ peut être décomposé en deux parties l'une symétrique et l'autre antisymétrique (2, 4, 5).

$$\rho_{ij}(\vec{B}) = \rho^s_{ij}(\vec{B}) + \rho^a_{ij}(\vec{B}) \qquad (4a)$$

telles que

$$\rho^s_{ij}(\vec{B}) = \rho^s_{ji}(\vec{B}) \qquad (4b)$$

$$\rho^a_{ij}(\vec{B}) = -\rho^a_{ji}(\vec{B}) \qquad (4c)$$

4 - En outre les relations d'ONSAGER doivent être appliquées (4) ; en présence d'un champ magnétique elles impliquent que :

$$\rho^s_{ij}(\vec{B}) = \rho^s_{ij}(-\vec{B}) = \rho^s_{ji}(-\vec{B})$$
$$\rho^a_{ij}(\vec{B}) = -\rho^a_{ij}(-\vec{B}) = \rho^a_{ji}(-\vec{B}) \qquad (5)$$

L'expression (3) peut donc être décomposée en deux séries : l'une symétrique contient les termes proportionnels à une puissance paire de B et l'autre antisymétrique contient les termes proportionnels à une puissance impaire de B.

$$\rho^s_{ij}(\vec{B}) = \rho^o_{ij} + A_{ijkl} B_k B_l + \ldots \qquad (a)$$
$$\rho^a_{ij}(\vec{B}) = R_{ijk} B_k + T_{ijklm} B_k B_l B_m \ldots \qquad (b) \qquad (6)$$

Les conditions de symétrie relatives aux indices liés à la densité de courant et à l'induction électrique s'appliquent pour chaque coefficient :

$$\rho^o_{ij} = \rho^o_{ji} \qquad (7a)$$

$$R_{ijk} = -R_{ijk} \qquad (7b)$$

$$A_{jikl} = A_{jikl} = A_{ij} \qquad (7c) \quad \text{(toutes permutations de k,l)}$$

$$T_{ijklm} = -T_{jiklm} = T_{ij} \qquad (7d) \quad \text{(toutes permutations de k,l,m)}$$

Définissons chaque coefficient :

- terme d'ordre zéro : ρ^o_{ij}. Il relie les vecteurs champ électrique et densité de courant en l'absence de champ magnétique c'est le tenseur du deuxième ordre et symétrique de résistivité électrique.

- terme d'ordre 1 : R_{ijk}

Ce terme correspond à une perturbation de 1er ordre sur le tenseur de résistivité : c'est le pseudo-tenseur du 3ème ordre de Hall. Il relie un tenseur antisymétrique d'ordre 2, ρ^a_{ij}, avec un vecteur axial B_k.

$$\rho^a_{ij}(\vec{B}) = R_{ijk}\ B_k \quad (8) \text{ (on écrit 6b avec seulement le 1er terme).}$$

Ainsi il est équivalent à un tenseur polaire de rang 2(4). On peut également le définir comme produit de 2 vecteurs axiaux (3). En effet (5) l'équation générale (2) peut s'écrire compte tenu de (4a) sous la forme :

$$\begin{aligned} E_i &= \rho^s_{ij}(\vec{B})\ J_j + \rho^a_{ij}(\vec{B})\ J_j \\ E_i &= \rho^s_{ij}(\vec{B})\ J_j + (\vec{J} \wedge \vec{R}(\vec{B}))_i \end{aligned} \qquad (9)$$

où $\vec{R}(\vec{B})$ le vecteur de Hall est une fonction impaire de B avec pour composantes

$R_1 = R_{23}$ $\qquad$ $R_2 = R_{31}$ $\qquad$ $R_3 = R_{12}$ $\qquad$ (5)

D'après l'équation (9) le vecteur de Hall correspond bien au terme tensoriel précédemment défini :

$$\vec{R}(\vec{B}) = R_{ijk}\ B_k \qquad (10)$$

Expérimentalement on mesure le potentiel de Hall $V_H = \frac{R_H \cdot J \cdot B}{e}$ dans la direction perpendiculaire au courant $\vec{J}$ et à l'induction $\vec{B}$; e est l'épaisseur de l'échantillon mesurée dans la direction perpendiculaire à $\vec{J}$ et parallèle à $\vec{B}$; R_H est la constante de Hall.

- terme d'ordre 2 : Aijkl

Ce terme correspondant à une perturbation du 2ème ordre sur la résistivité électrique.

C'est un tenseur de rang 4 reliant un tenseur symétrique de rang 2, ρ^s_{ij}, et un produit de vecteur $B_k\ B_l$. Il est symétrique par rapport à l'interchangeabilité de i avec k et de l avec m. Il peut être considéré comme reliant 2 tenseurs symétriques chacun de rang 2(4).

Ainsi dans l'approximation des champs faibles que nous considérons ici, $\rho^{s}_{ij}(\vec{B})$ doit être proportionnel au carré de l'induction magnétique.

Expérimentalement la magnétorésistance est par définition la variation relative de résistivité en présence de champ magnétique, mesurée dans la direction du courant électrique ($\vec{E}$ // $\vec{J}$), soit :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_o} = \frac{\rho(B) - \rho(o)}{\rho(o)} = \frac{\vec{E}(B) - \vec{E}(o)\,\vec{J}}{\vec{E}(o).\vec{J}} \qquad (11)$$

Deux cas extrêmes peuvent être définis

- $\vec{B} \perp \vec{J}$ c'est la magnétorésistance transverse : $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}$

- $\vec{B} // \vec{J}$ c'est la magnétorésistance longitudinale : $\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$

- Termes d'ordre supérieur à deux :

Les effets galvanomagnétiques T_{ijklm}, ... sont des tenseurs d'ordre supérieur aux précédents. Ces termes supérieurs peuvent être considérés comme des facteurs de perturbation de l'effet Hall et de la magnétorésistance.

Nous ne les considérerons pas dans cette étude puisque nous nous intéressons à l'approximation des champs faibles.

b) Etude d'une substance de structure hexagonale appartenant au groupe de points D_{6h} (ou 6/mmm)

α) Influence de la symétrie du milieu sur les valeurs des composantes des différents tenseurs.

Le nombre de composantes indépendantes et non nulles des coefficients galvanomagnétiques dépend du groupe de symétrie auquel appartient le cristal ; il est calculé à partir de la théorie des groupes (4). Le graphite appartient au groupe de symétrie D_{6h} (ou 6/mmm) et nous donnons ici des résultats (4).

- Le tenseur de résistivité a la forme bien connue :

$$\rho_{ij} = \begin{vmatrix} \rho_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \rho_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \rho_{33} \end{vmatrix}$$

- Le tableau des composantes non nulles pour le tenseur R_{ijk} de Hall pour le groupe 6/mmm est :

$$\begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & R_{132} & 0 & R_{123} & 0 \\ 0 & 0 & -R_{132} & 0 & 0 & 0 & -R_{123} & 0 & 0 \\ 0 & R_{132} & 0 & -R_{132} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}$$

selon que l'on utilise les notations correspondant à un pseudo tenseur de rang 3 (4) ou encore :

$$R_{(ij)k} = \begin{vmatrix} R_{(23)1} & 0 & 0 \\ 0 & R_{(23)1} & 0 \\ 0 & 0 & R_{(12)3} \end{vmatrix}$$

si on utilise les notations correspondant à un tenseur polaire de rang 2, les deux premiers indices étant antisymétriques (3). D'autre part, on doit observer la corrélation correcte entre le premier indice du tenseur ρ_{ij} et la première paire d'indice de $R_{(ij)k}$: $1 \rightarrow 23$, $2 \rightarrow 31$, $3 \rightarrow 12$.

Il y a 2 composantes indépendantes non nulles : $R_{(23)1}$ et $R_{(12)3}$. La suite de l'exposé sera faite en utilisant la seconde notation.

- A cause de la symétrie intrinsèque aux paires d'indices ij et kl, le schéma du tenseur de 4ème ordre de magnétorésistance peut être réduit à la forme du tableau ci-dessous (1), (3), (4) :

$$A_{ijkl} = A_{p,q} = \begin{vmatrix} A_{1,1} & A_{1,2} & A_{1,3} & 0 & 0 & 0 \\ A_{1,2} & A_{1,1} & A_{1,3} & 0 & 0 & 0 \\ A_{3,1} & A_{3,1} & A_{3,3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & A_{4,4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & A_{4,4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(A_{1,1} - A_{1,2}) \end{vmatrix}$$

Dans cette table les paires d'indices sont répertoriés par un simple indice allant de 1 à 6 de la façon suivante : (11) = 1 ; (22) = 2 ; (33) = 3 ; (23) = (32) = 4, (13) = (31) = 5 ; (12) = (21) = 6.

De plus on remarque que (4) :

$A_{iklm} = A_{p,q}$ quand p va de 1 à 6 et q = 1,2 ou 3

$2\,A_{iklm} = A_{p,q}$ quand p va de 1 à 6 et q = 4,5 ou 6

Finalement le nombre total de composantes est 9 pour $R_{(ij)k}$ et 36 pour A_{ijkl}, tandis que le nombre de composantes indépendantes et non nulles est 2 pour $R_{(ij)k}$ et 6 pour A_{ijkl} (4).

β) Application à l'étude des tenseurs de résistivité, d'effet Hall et de magnétorésistance.

Pour déterminer expérimentalement les coefficients des tenseurs de résistivité de magnétorésistance et d'effet Hall, il est nécessaire d'expliciter les relations existant entre le champ électrique $\vec{E}$ et la densité de

courant $\vec{J}$.

- Termes indépendants de l'induction magnétique :

Il vient immédiatement à partir des équations (3) et (6) en notant (1, 2, 3) les trois directions d'un référentiel orthonormé arbitraire :

$$\begin{aligned} E_1 &= \rho^{o}_{11} \; J_1 \\ E_2 &= \rho^{o}_{11} \; J_2 \\ E_3 &= \rho^{o}_{33} \; J_3 \end{aligned} \qquad (12)$$

- Termes linéaires en B :

La manière la plus simple de connaître les relations entre le champ électrique et la densité de courant est obtenue en effectuant la somme sur les composantes de l'induction magnétique indiquées par la relation (9) qui s'écrit alors :

$$E_i = \left(R_{(ij)k} \; B_k \right) \Lambda \; J_j \qquad (13)$$

Soit en notation matricielle :

$$R_{(ij)k} \; B_k = \begin{vmatrix} R_{(23)1} & 0 & 0 \\ 0 & R_{(23)1} & 0 \\ 0 & 0 & R_{(12)3} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \end{vmatrix} \qquad \begin{vmatrix} R_{(23)1} \; B_1 \\ R_{(23)1} \; B_2 \\ R_{(12)3} \; B_3 \end{vmatrix}$$

Il faut effectuer le produit vectoriel de cette matrice unicolonne avec celle de $\vec{J}$. Selon BOND (6) on peut remplacer un produit vectoriel

$$\begin{vmatrix} u_1 \\ u_2 \\ u_3 \end{vmatrix} \Lambda \begin{vmatrix} v_1 \\ v_2 \\ v_3 \end{vmatrix}$$

par un produit scalaire en écrivant :

$$u_\Lambda = \begin{vmatrix} u_1 \\ u_2 \\ u_3 \end{vmatrix} \quad \Lambda = \begin{vmatrix} 0 & -u_3 & u_2 \\ u_3 & 0 & -u_1 \\ -u_2 & u_1 & 0 \end{vmatrix}$$

$$\text{Soit } \left(R_{(ij)k}B_k\right)_\Lambda = \begin{vmatrix} 0 & -R_{(12)3}B_3 & R_{(23)1}B_2 \\ R_{(12)3}B_3 & 0 & -R_{(23)1}B_1 \\ -R_{(23)1}B_2 & R_{(23)1}B_1 & 0 \end{vmatrix}$$

Il vient donc :

$$\begin{vmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} 0 & -R_{(12)3}B_3 & R_{(23)1}B_2 \\ R_{(12)3}B_3 & 0 & -R_{(23)1}B_1 \\ -R_{(23)1}B_2 & R_{(23)1}B_1 & 0 \end{vmatrix} \begin{vmatrix} J_1 \\ J_2 \\ J_3 \end{vmatrix}$$

D'où en effectuant la multiplication matricielle et en identifiant les termes:

$$\begin{aligned} E_1 &= -R_{(12)3}B_3J_2 + R_{(23)1}B_2J_3 \\ E_2 &= R_{(12)3}B_3J_1 - R_{(23)1}B_1J_3 \\ E_3 &= -R_{(23)1}B_2J_1 + R_{(23)1}B_1J_2 \end{aligned} \qquad (14)$$

- Termes quadratiques :

A partir de l'équation générale (3) on constate que l'on peut écrire les termes proportionnels au carré de l'induction magnétique:

$$E_i = \left(A_{ijkl}\, B_k\, B_l\right) J_j \qquad (15)$$

Il faut connaître les différentes composantes de $\vec{J}$ c'est-à-dire sommer sur l'indice j en écrivant :

$$E_i = \sum_j D_{ij} \; J_j \qquad (16)$$

en posant $D_{ij} = \sum_{kl} A_{ijkl} \; B_k \; B_l \qquad (17)$

Expression que l'on écrit ainsi en notation matricielle :

$$D_{ij} = |\tilde{B}| \; |A_{kl}|_{ij} \; |B| \qquad (18)$$

$|A_{kl}|_{ij}$ est une matrice 3 x 3 qu'il faut écrire pour chaque valeur de i et de j. Explicitons à présent E_1 (i = 1).

- pour j = 1

$$\left[\begin{vmatrix} B_1 & B_2 & B_3 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} A_{11} & 0 & 0 \\ 0 & A_{12} & 0 \\ 0 & 0 & A_{13} \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \end{vmatrix} \right] = (A_{11}B_1^2 + A_{12}B_2^2 + A_{13}B_3^2) \; J_1 \qquad (19)$$

- pour j = 2

$$\left[\begin{vmatrix} B_1 & B_2 & B_3 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} 0 & \frac{1}{2}(A_{11} - A_{12}) & 0 \\ \frac{1}{2}(A_{11} - A_{12}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \end{vmatrix} \right] J_2 = \left((A_{11} - A_{12}) \; B_1 B_2 \right) J_2 \qquad (20)$$

- pour $j = 3$

$$\left[\begin{vmatrix} B_1 & B_2 & B_3 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} 0 & 0 & A_{44} \\ 0 & 0 & 0 \\ A_{44} & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \end{vmatrix} \right] J_3 = 2\, A_{44}\, B_1\, B_3\, J_3 \qquad (21)$$

$$\text{D'où } E_1 = \left(A_{11}\, B_1^2 + A_{12}\, B_2^2 + A_{13}\, B_3^2\right)\, J_1 + \left((A_{11} - A_{12})\, B_1\, B_2\right) J_2 + \left(2\, A_{44}\, B_1\, B_3\right)\, J_3 \qquad (22)$$

Il vient de même pour les deux autres composantes :

$$E_2 = \left((A_{11} - A_{12}) B_1 B_2\right) J_1 + \left(A_{12}\, B_1^2 + A_{11}\, B_3^2 + A_{13} B_3^2\right)\, J_2 + \left(2A_{44}\, B_2 B_3\right) J_3 \qquad (23)$$

$$E_3 = \left(2\, A_{44} B_1 B_3\right) J_1 + \left(2A_{44} B_2 B_3\right) J_2 + \left(A_{31}\,(B_1^2 + B_2^2) + A_{33} B_3^2\right) J_3 \qquad (24)$$

c) Méthode expérimentale de détermination des coefficients galvanomagnétiques

Les effets galvanomagnétiques sont définis par rapport aux directions du courant $\vec{J}$ et de l'induction magnétique $\vec{B}$. Parmi tous les dispositifs expérimentaux (3) (7) possibles, il est particulièrement simple de fixer la direction du courant $\vec{J}$ par rapport aux axes cristallographiques : l'induction magnétique $\vec{B}$ peut alors prendre toutes les dispositions par rapport à $\vec{J}$. En mesurant le champ électrique dans la direction de $\vec{J}$ soit E_J, on détermine la magnétorésistance transverse $(\vec{B} \perp \vec{J})$ ou longitudinale $(\vec{B} // \vec{J})$ et en le mesurant dans la direction perpendiculaire au plan $(\vec{J}, \vec{B})$ soit E_H, on peut calculer le coefficient de Hall.

Ainsi, dans le cas d'un monocristal de graphite, deux types d'expériences simples peuvent être réalisées (voir figure 1) :

α) Dispositif expérimental n°1 : - $\vec{J} \perp \vec{C}$ (axe senaire perpendiculaire aux plans graphitiques)

Les directions de $\vec{J}$ et de $\vec{B}$ par rapport à l'axe sont représentées sur la figure 1 ; $\emptyset$ est l'angle entre l'axe C et l'induction magnétique $\vec{B}$. Deux types de mesures peuvent être réalisés suivant que le plan de rotation de $\vec{B}$ est perpendiculaire à $\vec{J}$ ou bien comprend $\vec{J}$.

1 - $\vec{J}$ perpendiculaire au plan (π) de rotation de $\vec{B}$:

Les composantes de $\vec{J}$ et de $\vec{B}$ sont alors :

$$\vec{J} \begin{cases} J_1 = |\vec{J}| \\ J_2 = 0 \\ J_3 = 0 \end{cases} \qquad \vec{B} \begin{cases} B_1 = 0 \\ B_2 = |\vec{B}| \sin \emptyset \\ B_3 = |\vec{B}| \cos \emptyset \end{cases}$$

En substituant les composantes dans les équations générales précédemment établies, il vient :

$$E_J = E_1 = \rho^o_{11} \, |\vec{J}| + (A_{12} \sin^2 \emptyset + A_{13} \cos^2 \emptyset) |\vec{B}|^2 \cdot |\vec{J}| \quad (25)$$

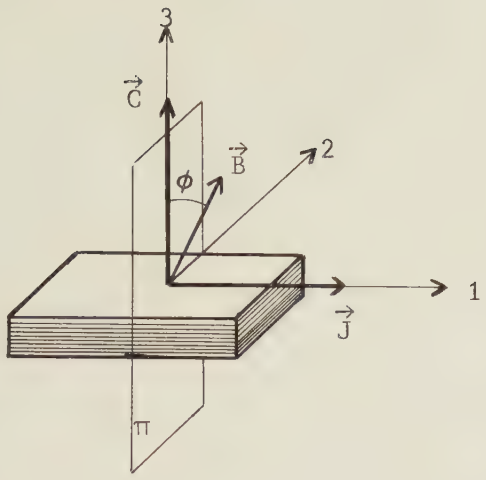
$$E_H = E_2 = R_{(12)3} \, |\vec{B}| \cdot |\vec{J}| \cos \emptyset \quad (26)$$

2 - $\vec{J}$ dans le plan de rotation de $\vec{B}$:

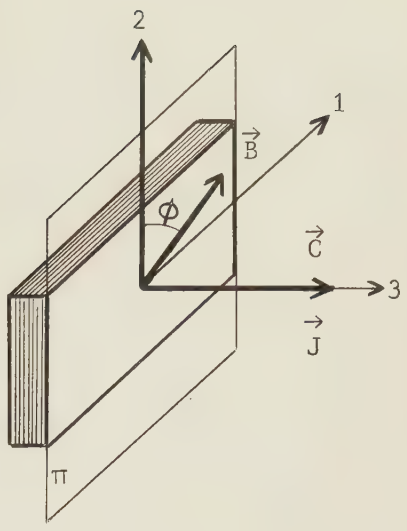
A ce moment là, les composantes de $\vec{B}$ sont : $\begin{cases} B_1 = |\vec{B}| \sin \emptyset \\ B_2 = 0 \\ B_3 = |\vec{B}| \cos \emptyset \end{cases}$

Il vient :

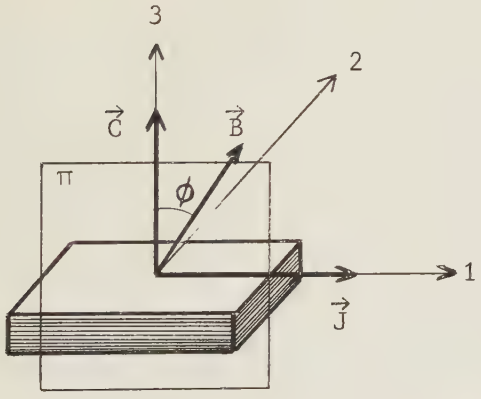
$$E_J = \rho^o_{11} \, |\vec{J}| + (A_{11} \sin^2 \emptyset + A_{13} \cos^2 \emptyset) \, |\vec{J}| \cdot |\vec{B}|^2 \quad (27)$$



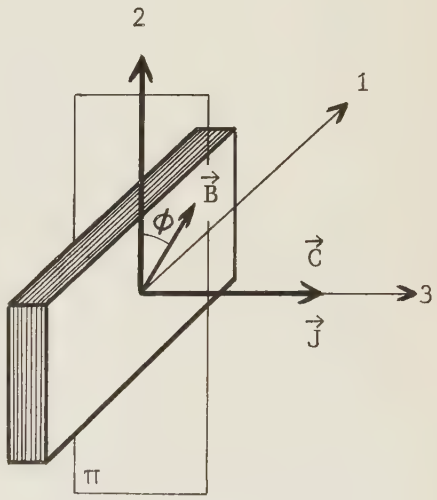
1-1 $\vec{J} \perp \vec{C}$ $\vec{J} \perp (\pi)$ Connaissance de $A_{13} \rightarrow A_{12}$ $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_\perp'}{\rho_o}$



2-1 $\vec{J} \parallel \vec{C}$ $\vec{J} \perp (\pi)$ Connaissance de A_{31}



1-2 $\vec{J} \perp \vec{C}$ $\vec{J} \parallel (\pi)$ Connaissance de $A_{13} \rightarrow A_{11}$ $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_\parallel}{\rho_o}$



2-2 $\vec{J}_\parallel \vec{C}$ $\vec{J}_\parallel (\pi)$ Connaissance de $A_{31} \rightarrow A_{33}$

Dispositif expérimental n° 1

Dispositif expérimental n° 2

FIGURE 1

Puis, comme l'équation (26) :

$$E_H = R_{(12)3} \left|\vec{B}\right| \cdot \left|\vec{J}\right| \cos \phi$$

β) Dispositif expérimental n°2 : - $\vec{J}$ parallèle à l'axe C (figure 1) où ϕ est alors l'angle entre l'axe de référence, dans ce cas l'axe noté 2,et l'induction magnétique.

Deux types de mesures sont également possibles :

1 - $\vec{J}$ perpendiculaire au plan (π) de rotation de $\vec{B}$:

Les composantes de $\vec{J}$ et $\vec{B}$ sont :

$$\vec{J} \begin{cases} J_1 = 0 \\ J_2 = 0 \\ J_3 = \left|\vec{J}\right| \end{cases} \qquad \vec{B} \begin{cases} B_1 = \left|\vec{B}\right| \sin \phi \\ B_2 = \left|\vec{B}\right| \cos \phi \\ B_3 = 0 \end{cases}$$

On trouve alors :

$$E_J = E_3 = \rho^o_{33} \left|\vec{J}\right| + A_{31} \left|\vec{B}\right|^2 \cdot \left|\vec{J}\right| \qquad (28)$$

$$E_H = E_1 = R_{(23)1} \left|\vec{B}\right| \cdot \left|\vec{J}\right| \cdot \cos \phi \qquad (29)$$

2 - $\vec{J}$ dans le plan de rotation de $\vec{B}$:

Les composantes de $\vec{B}$ deviennent :

$$\vec{B} \begin{cases} B_1 = 0 \\ B_2 = \left|\vec{B}\right| \cos \phi \\ B_3 = \left|\vec{B}\right| \sin \phi \end{cases}$$

On obtient de même :

$$E_J = \rho^o_{33} \left|\vec{J}\right| + \left(A_{31} \cos^2 \phi + A_{33} \sin^2 \phi\right) \left|\vec{B}\right|^2 \cdot \left|\vec{J}\right| \qquad (30)$$

puis, comme l'équation (29)

$$E_H = E_1 = R_{(23)1} \; |\vec{B}| \cdot |\vec{J}| \cos \phi$$

Avec ces dispositifs expérimentaux, on peut donc déterminer tous les coefficients du tenseur de magnétorésistance à l'exception de A_{44} qui nécessite un dispositif plus élaboré ($\vec{J}$ ne doit être ni parallèle ni perpendiculaire à l'axe C).

Remarque

Les coefficients du tenseur de magnétorésistance ont été définis pour un monocristal de graphite. Dans un échantillon polycristallin où les cristallites sont déposés selon une orientation préférentielle (les pyrocarbones par exemple), les axes principaux de la plaquette ne sont pas ceux du monocristal. La figure 1 doit être modifiée de la façon suivante : le parallélépipède représente alors la "plaquette échantillon" entière et non plus le monocristal, et l'axe C représenté devient la normale à cette plaquette. Moyennant ces remarques nous utiliserons les dispositifs expérimentaux 1-1 et 1-2 car, comme nous le verrons par la suite, nous n'avons pas effectué de mesures avec le courant $\vec{J}$ parallèle à la normale à la plaquette.

Ainsi, l'expérience (cf chapitre I-3 et IIe partie) fournira des coefficients de magnétorésistance transverse et longitudinale qui ne pourront être directement assimilés (cf. paragraphe III.1) aux coefficients théoriques du tenseur de magnétorésistance précédemment définis.

I.1.2 - Les modèles en physique du solide

En passant de la théorie phénoménologique aux modèles de la physique du solide les phénomènes macroscopiques expérimentalement observables sont alors interprétés à partir du comportement microscopique de la matière.

Dans le cas des propriétés galvanomagnétiques un matériau solide conducteur est caractérisé par le comportement des électrons mobiles qu'il possède. Pour interpréter les propriétés physiques on a tout d'abord supposé que l'on avait un gaz d'électrons libres obéissant à la statistique de Fermi - Dirac . Ce modèle étant apparu très rapidement trop simple il a fallu tenir compte des interactions entre les électrons et

leur environnement, c'est-à-dire dans le cas d'un solide cristallin du potentiel périodique du réseau. On a ainsi introduit le concept de masse effective ; dans cette approximation l'électron se comporte comme s'il était libre mais avec une masse variable m* qui en toute généralité est un tenseur de deuxième ordre, ainsi définie (8) :

$$\frac{1}{m^*}_{ij} = \frac{1}{\hbar^2}\left[\frac{\partial^2 E_k}{\partial k_i \, \partial k_j}\right] \qquad (31)$$

où $\vec{k}$ est le vecteur d'onde appartenant à l'espace réciproque et E_k l'énergie de l'électron. Cette approximation est valable tant que la forme des bandes d'énergie est parabolique ($E_k \sim k^2$) ce qui est justifié dans de nombreux cas. Dans le cadre de ce modèle on peut examiner le comportement des électrons et d'une manière générale celui des porteurs de charge libres (électrons et trous) (8) en présence d'un champ électrique seul d'une part et superposé une induction magnétique d'autre part.

a) Application d'un champ électrique

On montre qu'en présence d'un champ électrique externe et constant $\vec{E}$ la conductivité électrique a pour expression :

$$\sigma = \sum_i n_i e \mu_i \qquad (32)$$

avec

$$\mu_i = \frac{e \tau_i}{m_i^*} \qquad (33)$$

n_i est le nombre de porteur de l'espèce i
μ_i est leur mobilité, τ_i leur temps de relaxation et m_i^* leur masse effective moyenne.

b) Application simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique

Cette application est comme nous l'avons vu à l'origine des propriétés galvanomagnétiques : effet Hall et magnétorésistance ; deux théories rendent compte de ces phénomènes.

Théorie classique : A partir de l'équation de transport de Boltzmann (1), les coefficients de transport ont été exprimés pour un solide isotrope.

- Cas d'un type de porteur de charge (modèle à une bande) : On montre que le coefficient de Hall a pour expression :

$$R_H = \frac{1}{n|e|} \qquad (34)$$

où n est le nombre de porteurs par unité de volume.

Dans ce cas la magnétorésistance transverse ou longitudinale est nulle.

- Cas de deux types de porteurs : modèle à deux bandes (trous dans la bande de valence et électrons dans la bande de conduction). On considère séparément chaque bande dans l'approximation de la masse effective en supposant qu'il n'y a pas d'interaction entre elles.

Pour le coefficient de Hall le calcul conduit à l'expression :

$$R_H = \frac{1}{|e| n_t} \left[\frac{b^2 - a + B^2 \mu_t^2 (a-1)}{(a+b)^2 + B^2 \mu_t^2 (a-1)^2} \right] \qquad (35)$$

la magnétorésistance transverse est donné par la relation :

$$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} = \frac{a \left(\frac{b+1}{b+a} \right)^2 \mu_e \mu_t B^2}{1 + \left(\frac{a-1}{a+b} \right)^2 \mu_t^2 B^2} \qquad (36)$$

où n_e et n_t sont les nombres d'électrons et de trous par unité de volume,

μ_e et μ_t les mobilités des électrons et des trous,

$$\text{et} \quad a = \frac{n_e}{n_t} \quad , \quad b = \frac{\mu_t}{\mu_e}$$

Les relations ci-dessus restent assez complexes et laissent supposer que les résultats expérimentaux ne sont pas directement interprétables.

Cependant, il existe 2 cas particuliers où les relations deviennent plus simples.

α) Cas des champs magnétiques faibles

Le porteur effectue moins d'une révolution avant de subir une collision ($\mu B \ll 1$).

Dans ce cas le coefficient de Hall est une constante.

$$R_H = \frac{1}{|e| n_t} \quad \frac{b^2 - a}{(a + b)^2} \qquad (37)$$

et la magnétorésistance transverse est une fonction du carré de l'induction magnétique :

$$\frac{\Delta \rho_\perp}{\rho_o} = a \left(\frac{b + 1}{b + a} \right)^2 b (\mu_e B)^2 \qquad (38)$$

β) Cas des champs magnétiques forts

Le porteur effectue une ou plusieurs révolutions et sera donc plus sensible à la forme exacte de la trajectoire suivie ($\mu B \gg 1$)

Le coefficient de Hall fournit la différence entre le nombre d'électrons et le nombre de trous :

$$R_H = \frac{1}{|e| (n_t - n_e)} \qquad (39)$$

En ce qui concerne la magnétorésistance transverse, 2 possibilités doivent être considérées :

- $n_t = n_e$ ($a = 1$) l'équation (38) est encore valable .

- $n_t \neq n_e$ ($a \neq 1$) la magnétorésistance devient indépendante de l'induction magnétique. On exprime ce fait en disant qu'elle se sature.

Remarque :

En ce qui concerne la magnétorésistance longitudinale, elle est dans le cas général proportionnelle au carré de l'induction magnétique dans l'approximation des champs faibles et tend ensuite vers une valeur constante lorsque l'induction magnétique devient importante. Par contre lorsque le solide est isotrope, elle est nulle, comme dans le cas où il n'y a qu'un seul type de porteurs(1).

Théorie quantique : Quand l'énergie magnétique est supérieure à l'énergie thermique ($\hbar\omega > kT$) et lorsque la condition de relaxation $\mu B = \omega\tau \gg 1$ est satisfaite, la quantification des orbites apparaît et conduit aux effets oscillatoires habituels, en particulier l'effet de Shubnikov de Hass pour la magnétorésistance. Nous signalons simplement cette théorie qui ne nous interesse pas dans le cadre de l'étude envisagée ici où nous n'avons pas rencontré de tels effets.

I - 2 - NOTIONS DE MAGNETORESISTANCE NEGATIVE

Nous allons décrire les différents types d'échantillons dans lesquels on rencontre expérimentalement une magnétorésistance négative. Nous nous attacherons ensuite à décrire le phénomène existant dans les semi-conducteurs classiques : éléments de la colonne IV de la classification périodique (Si, Ge dopés et composés non stoechiométriques des éléments des colonnes III et V (SbIn, GaSb,GaAs...). Après avoir présenté les différentes théories proposées, il nous sera possible dans les prochains paragraphes de comparer ces résultats avec ceux obtenus sur les carbones prégraphitiques et les pyrocarbones en particulier.

I.2.1 - Classification générale

A côté de la magnétorésistance positive dont rendent compte la théorie phénoménologique et les modèles de la physique du solide décrits précédemment, on observe expérimentalement une magnétorésistance négative. Cette magnétorésistance est liée en général à l'existence d'une structure non rigoureusement périodique et il n'existe pas d'interprétation générale qui en rende compte. Cependant, un certain nombre de modèles basés sur une classification structurale des échantillons étudiés ont été avancés (9). On distingue en général d'une part les échantillons inhomogènes et d'autre part les échantillons homogènes. Nous allons définir ces deux types d'échantillons.

a) Echantillons inhomogènes

Deux cas principaux sont à considérer :

- un solide non-cristallin est inhomogène s'il contient deux phases (zones cristallines noyées dans une phase amorphe) même si leur répartition dans le solide est uniforme.

- un solide cristallin contenant des impuretés ou des défauts de réseau sera considéré également comme inhomogène lorsque ces pertur-

bations ne sont pas réparties de manière statistique (existence d'un gradient de concentration d'impuretés ou de défauts).

Dans ces deux cas, on distingue deux types d'inhomogénéités bien qu'il n'y ait pas de limites précises entre elles :

- les micro-inhomogénéités lorsque les dimensions des inhomogénéités sont petites devant la taille de l'échantillon, mais grandes devant le libre parcours moyen d'un porteur de charge.

- les macro-inhomogénéités lorsque les dimensions de l'inhomogénéité sont comparables aux dimensions de l'échantillon.

b) Echantillons homogènes

On considère comme homogènes tous les échantillons qui ne sont pas classés comme étant inhomogènes, c'est-à-dire ceux dans lesquels les imperfections de la structure cristalline sont essentiellement à l'échelle atomique et les défauts de réseau ou impuretés répartis statistiquement.

I.2.2 - Interprétation de la magnétorésistance négative dans les solides homogènes

Par définition, la magnétorésistance négative se manifeste par un accroissement de la conductivité électrique en présence de champ magnétique. On peut donc l'attribuer soit à une augmentation du nombre de porteurs de charge , soit à une augmentation de leur mobilité, soit encore à une augmentation simultanée des deux grandeurs en présence d'un champ magnétique.

a) Variation du nombre de porteurs avec l'induction magnétique

Dans les semi-conducteurs possédant des niveaux d'impuretés dans la bande d'énergie interdite et des porteurs de charge de faible masse effective dans les bandes de valence et de conduction, on peut observer un changement de la concentration des porteurs résultant du déplacement des niveaux d'énergie de ces porteurs par l'induction magnétique.

En effet, dans le cadre du modèle de l'électron libre soumis au potentiel d'un réseau, en présence d'une induction magnétique, l'énergie des niveaux quasi continus est quantifiée (8) dans le plan perpendiculaire à la direction de l'induction magnétique :

$$E = \frac{h^2 \; k^2}{8\pi^2 \; m^*} + (2n + 1) \; B \; \mu_B^* \pm B \; \mu_B \qquad (40)$$

où h est la constante de Planck

$\vec{k}$ la vecteur d'onde appartenant à l'espace réciproque

m* la masse effective

μ_B le magnéton de Bohr : $\mu_B = \frac{eh}{4\pi m}$

μ_B^* le magnéton de Bohr effectif $\mu_B = \frac{eh}{4\mu m^*}$

Dans cette expression, le 2ème terme dû au mouvement orbital des électrons correspond à un effet diamagnétique. Le troisième caractérisant l'orientation du spin électronique par rapport à l'induction magnétique correspond à un effet paramagnétique.

A partir de cette équation représentant la variation d'énergie des porteurs de charge libres en fonction de l'induction magnétique, on peut montrer qu'il y a une variation de leur nombre s'il existe des états d'énergie localisés et placés légèrement au-dessus ou au-dessous du niveau de Fermi suivant qu'ils sont accepteurs ou donneurs d'électrons. Différentes études ont été effectuées afin d'interpréter l'existence d'une magnétorésistance négative dans certains semi-conducteurs (10). Nous ne considérerons ici que le modèle de INOUE et UEMURA (11) qui a été utilisé dans le cadre de l'étude des propriétés galvanomagnétiques des carbones.

Ces auteurs considèrent à la fois l'effet paramagnétique et l'effet diamagnétique sur les porteurs de charge en considérant qu'ils forment un gaz de particules non dégénérées (ils emploient la statistique de Maxwell-Boltzmann pour effectuer leurs calculs). Ils examinent trois cas possibles sur la nature des niveaux d'impuretés: des niveaux donneurs discrets, une bande d'impuretés étroite dont la largeur est inférieur à l'agitation thermique kT, ou encore une bande d'impuretés large.

- Dans le premier cas la concentration des porteurs est une fonction décroissante de l'induction magnétique.

- Dans le deuxième cas lorsque la masse effective est petite (inférieur à une certaine valeur déterminée dans le calcul) l'effet paramagnétique est négligeable devant l'effet diamagnétique et la concentration des porteurs décroit avec l'induction magnétique. Si par contre la masse effective n'est pas petite (supérieure à la même valeur que précédemment), l'effet paramagnétique est dominant et on peut s'attendre à un accroissement du nombre de porteur avec l'induction magnétique.

- Le troisième cas est semblable au second.

En conclusion, remarquons que si dans certains cas particuliers, l'interprétation de la magnétorésistance négative par un accroissement du nombre de porteur est possible, elle ne présente pas un caractère aussi général que l'on pourrait le penser.

b) Augmentation de la mobilité des porteurs

Différentes possibilités conduisent à une augmentation du libre parcours moyen des porteurs ; deux types d'effets distincts semblent pouvoir exister :

α) Effet de taille :

Lorsque le libre parcours moyen des électrons de conduction et le rayon des orbites circulaires qu'ils décrivent en présence de champ magnétique sont du même ordre de grandeur que l'une des dimensions géométriques de l'échantillon se trouvant dans le plan perpendiculaire au champ magnétique (fil ou film métallique très fins), une magnétorésistance négative peut apparaitre. En effet, la force de Lorentz peut suffisamment courber la trajectoire des électrons pour éviter les collisions habituelles avec un bord de l'échantillon ou d'un cristallite et augmenter ainsi le libre parcours moyen. Cet effet ne peut avoir lieu qu'à très basses températures sur des solides cristallins ainsi que l'ont montré SONDHEIMER et Mc DONALD (12)(13).

β) Interaction entre les électrons de la bande de conduction et des spins localisés.

Les métaux nobles contenant des impuretés magnétiques provenant d'un métal de transition utilisé comme agent dopant, possèdent une magnétorésistance négative aux basses températures (14). En outre, les semi-conducteurs dopés et dont le gaz d'électrons est dégénéré (8) présentent également une magnétorésistance négative analogue (15). A partir de ces constatations expérimentales, TOYOZAWA (16) a proposé une théorie basée sur l'interaction dipolaire magnétique entre les électrons de la bande de conduction et des spins localisés pour interpréter les résultats obtenus sur les semi-conducteurs dont le gaz porteur est dégénéré. Avant de présenter les résultats expérimentaux et les grandes lignes de cette théorie, remarquons que certains semi-conducteurs non dégénérés présentent une magnétorésistance négative en régime quantique (17) ($\mu B \equiv \omega\tau \gg 1$) dont nous ne parlerons pas ici.

- Caractéristiques expérimentales de la magnétorésistance négative dans les semi-conducteurs "dégénérés" :

- Variation avec la température :

Les variations thermiques des propriétés galvanomagnétiques montrent que l'effet Hall présente une valeur maximale lorsque la magnétorésistance négative apparait (18,19). Au-delà de ce maximum, lorsque la température s'abaisse jusqu'aux très basses températures (environ 1°K), la résistivité croît faiblement et devient pratiquement constante (18)(20) tandis que la magnétorésistance négative croît en valeur absolue d'une manière monotone (21).

- Variation avec l'induction magnétique :

A faible induction la magnétorésistance négative est proportionnelle au carré de l'induction (22) ; elle change de signe et devient positive aux inductions plus élevées (19)(23). En outre, la magnétorésistance négative ne semble pas être une grandeur anisotrope (les magnétorésistances négatives transverse et longitudinale sont presque identiques) (19) (24). Récemment la magnétorésistance mesurée sur un échantillon de n-GaSb a pu être décomposée en deux termes, l'un purement positif croissant avec l'induction magnétique, l'autre purement négatif décroît puis se sature (25).

- Variation avec la concentration des porteurs :

Pour un semi-conducteur donné, le minimum expérimental de la magnétorésistance négative observée en fonction de l'induction magnétique atteint la valeur la plus basse pour une concentration particulière d'impuretés (19, 22). Ce minimum ne semble cependant pas en relation directe avec l'induction critique lorsque le signe de la magnétorésistance change (23).

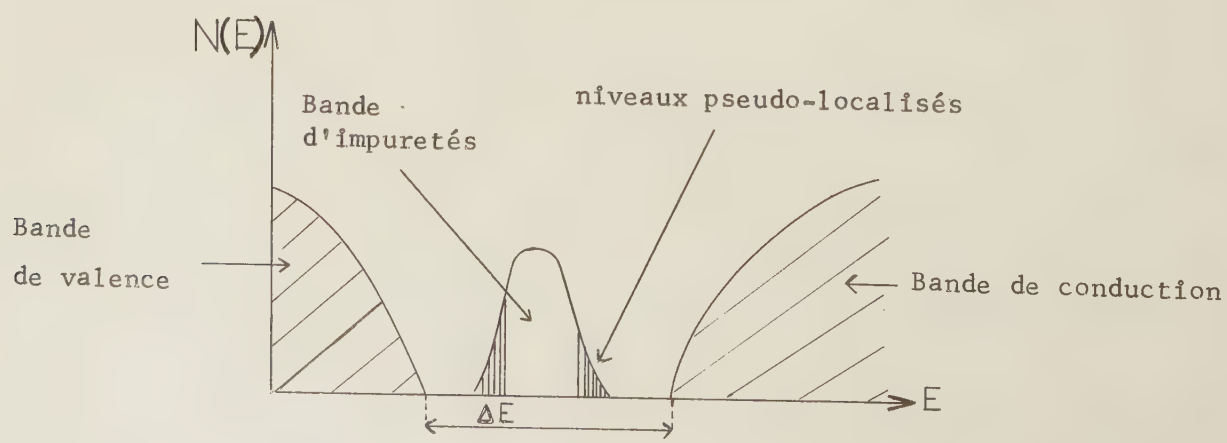
Théorie de Toyozawa (16)

Rappelons tout d'abord que la conduction électrique dans les semi-conducteurs dopés est due à une conductivité par électrons (type n) ou par trous (type p). La concentration en impuretés peut fournir l'un ou l'autre des mécanismes de conduction suivants :

A faible concentration, les électrons relatifs aux impuretés restent localisés aux sites d'impuretés et la conduction se fait par sauts électroniques.

A forte concentration, il y a recouvrement des fonctions d'onde des électrons d'impuretés, qui constituent une bande d'impuretés située entre la bande de valence et celle de conduction et qui peut même rejoindre une de ces bandes : les électrons sont alors totalement délocalisés : la conduction est de type métallique.

A concentration intermédiaire, les électrons des atomes d'impuretés possèdent à la fois un caractère de localisation et un caractère de délocalisation. On les qualifie d'électrons pseudolocalisés. Dans ce cas, des "niveaux pseudolocalisés" apparaissent aux extrêmités de la bande d'impuretés ; ils correspondent à l'existence de spins pseudolocalisés.



A partir de ces considérations et par analogie avec le cas des alliages contenant une impureté magnétique, Toyozawa a effectué un calcul théorique dans lequel le problème est formulé dans le cadre de la théorie à N corps en terme de fonction de Green et traité dans l'approximation de Hartree-Fock. Cet auteur montre que la modification du processus habituel de diffraction due à une orientation d'ensemble de ces spins localisés par application du champ magnétique ou par un abaissement de température entraîne un accroissement du libre parcours moyen donc de la mobilité des porteurs.

A partir de cette théorie, qui montre que les spins localisés présentent une interaction mutuelle du type antiferromagnétique faible, TOYOZAWA prévoit une magnétorésistance négative proportionnelle au carré de l'induction magnétique pour les faibles valeurs de cette induction et qui se sature lorsque ce dernier croît (à ce moment, la magnétorésistance positive doit apparaître de nouveau).

Toute cette théorie est basée sur l'existence de niveaux d'énergie pseudolocalisés. En fait, on peut trouver toute une gamme de sites plus ou moins isolés, ceux qui jouent un rôle important dans la magnétorésistance négative étant ceux suffisamment isolés pour avoir des spins localisés, mais pas trop pour ne pas exclure l'intéraction avec les porteurs. D'autre part, il faut que l'existence des sites magnétiques localisés ne soit pas incompatible avec la nature de la bande d'impuretés. Le calcul estime à 10 % le pourcentage de sites pouvant posséder de tels spins pseudolocalisés.

La théorie prévoit d'autre part la relation suivante :

$$\left| -\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \right|^{\frac{1}{2}} = f\left(\frac{B}{T - \theta} \right) \qquad (41)$$

où f est une fonction qui peut être assimilée à la fonction de Brillouin. A partir de cette relation, on peut écrire que la magnétorésistance est une fonction de la magnétisation moyenne des moments localisés (21)(24) : $-\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \sim < m >^2$. D'autre part, θ est une constante analogue à une température de Curie, responsable de l'interaction magnétique entre ces moments localisés (en général $|\theta|$ # quelques ° K).

A la limite des inductions faibles, on montre que :

$$\left| -\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \right| \sim \left(\frac{B}{T - \theta} \right)^2 \quad \text{soit encore} \quad \left| -\frac{\Delta\rho}{\rho_o \cdot B^2} \right|^{-\frac{1}{2}} \sim T-\theta \sim \frac{1}{\chi} \qquad (42)$$

où χ est la susceptibilité magnétique des spins pseudolocalisés.

A la limite des inductions fortes, tous les spins sont alignés ($\mu B \gg KT$)(μ est ici le moment magnétique de spin) et la magnétorésistance négative se sature. La magnétorésistance positive habituelle devient alors prédominante.

Dans l'ensemble, les résultats expérimentaux (19)(20)(22)(23)(24)(25) concordent bien avec la théorie de Toyozawa. Cependant, un problème se pose, à savoir que le moment magnétique moyen de ces spins pseudolocalisés, estimé à partir des résultats expérimentaux est cinq à dix fois plus grand que celui d'un spin d'une impureté isolée. Pour l'expliquer, il faut faire intervenir la distribution statistique des moments magnétiques des spins localisés et la nature collective d'orientation de ces spins localisés.

En définitive, un phénomène intrinsèque peut expliquer l'existence de la magnétorésistance négative, mais à basse température seulement. A haute température, on est limité à une interprétation phénoménologique fondée sur le rôle joué par les inhomogénéités présentes dans l'échantillon.

I-3 - ETUDE CRITIQUE DE LA BIBLIOGRAPHIE

Du point de vue structural on distingue généralement trois classes de carbones :

- les graphites
- les carbones à orientation préférentielle
- les carbones non orientés.

La seconde classe est constituée par les pyrocarbones qui sont caractérisés par une température de dépot TD, de l'ordre de 2000°, et les pyrographites qui sont des pyrocarbones retraités à haute température et sous forte pression. Les plus parfaits d'entre eux présentent des propriétés électroniques voisines de celles des monocristaux de graphite naturel ; ils peuvent être inclus dans la 1ère catégorie. L'anisotropie de magnétorésistance peut être évaluée pour ces deux sortes de carbones, mais, en ce qui concerne les carbones non orientés (carbones tendres, noirs de carbone, carbones durs), on détermine seulement les valeurs moyennes de magnétorésistance et d'effet Hall.

Une étude bibliographique complète relative aux magnétorésistances positive et négative dans les carbones a été faite par DELHAES (15) ; Aussi, dans ce chapitre, résumerons-nous seulement les résultats relatifs à l'étude de la magnétorésistance des pyrocarbones, le graphite constituant le terme ultime de la série. L'analyse critique que nous ferrons motivera l'orientation de notre propre recherche. Remarquons cependant que les premiers résultats intéressants concernant la magnétorésistance négative ont été publiés en 1956 par MROZOWSKI et CHABERSKI (26).

I.3.1 - Définitions

a) Les pyrocarbones

Rappelons que ces carbones sont produits par pyrolyse de vapeur organique sur un support convenable (du graphite en général) sous une basse pression et à une température de l'ordre de 2000°C. Ceci explique la forte anisotropie de structure de ces dépôts qui se caractérisent par plusieurs paramètres :

- L'orientation moyenne des cristallites par rapport au plan de dépot
- L'orientation des couches les unes par rapport aux autres
- La distance moyenne entre plans graphitiques.

Par un traitement thermique ultérieur caractérisé par la plus haute température de traitement (HTT) et la durée de traitement (D), la structure initiale du pyrocarbone évolue vers la structure parfaite du graphite, tridimensionnelle et bien ordonnée. Ce sont des carbones parfaitement graphitisables.

Nous classerons les pyrocarbones parmi les échantillons homogènes définis dans le chapitre précédent.

b) Les paramètres expérimentaux

Les études sur la magnétorésistance se font en général en fonction de trois paramètres :

- l'induction magnétique B
- La température T
- L'angle ϕ entre la direction de l'induction et la normale de la plaquette.

$$\phi = 0 : \frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}$$

$$\phi = 90° : \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$$

Nous classerons les divers résultats en fonction du degré de graphitisation des matériaux étudiés.

I.3.2-Résultats obtenus par les divers auteurs

La plupart des travaux concernent la magnétorésistance transverse ; nous présenterons également quelques travaux relatifs à l'anisotropie de magnétorésistance.

a) Evolution du signe de la magnétorésistance en fonction de HTT et de T : $\left(\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}\right)_B = f(HTT,T)$

α) si la température de dépôt (TD) est inférieure ou égale à 2000°, la magnétorésistance est négative quelque soit l'intensité de l'induction magnétique lorsque la température d'observation est comprise entre 78°K et 295°K. Ceci a été mis en évidence par UBBELOHDE (27), KLEIN (28,29) et GROMB (30).

β) Lorsque l'échantillon est fortement graphité (à partir de HTT = 2700°), quelque soit la température d'observation, $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}$ est positive. De plus à une température donnée, lorsque HTT augmente $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}$ croit également, mais pour un échantillon donné, $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}$ diminue lorsque T augmente (KLEIN(28), GROMB (30)). Le cas limite est celui du graphite largement étudié en particulier par SOULE (31) KLEIN et SPAIN (32) MC CLURE et SPRY (33) où le phénomène présente un comportement identique.

γ) Le cas intermédiaire est celui des pyrocarbones moyennement graphités ; KLEIN (29) et GROMB (30) ont observé qu'à basse température ils étaient caractérisés par une magnétorésistance négative alors qu'à température ambiante la magnétorésistance devient positive. Cependant lorsque HTT augmente, même à très basse température la magnétorésistance positive continue de croître. Comme dans le cas des échantillons fortement graphités, les auteurs ont observé une diminution de la magnétorésistance positive lorsque la température de mesure s'élève.

b) Allure de la variation en fonction de l'induction magnétique $\left(\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}\right)_{T,HTT} = f(B)$.

La formule empirique utilisée par beaucoup d'auteurs afin de paramétrer la variation de magnétorésistance positive en fonction de l'induction magnétique a pour expression $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} = cB^n$ (43).

c est une constante d'autant plus grande que le cristal est parfait (32) mais l'exposant est encore plus caractéristique du comportement de l'échantillon dans un domaine limité de l'induction magnétique.

α) magnétorésistance négative

KLEIN (28) a utilisé cette formule (43) pour rendre compte de la magnétorésistance négative d'un pyrocarbone déposé à 1900°C. Il a trouvé $n = 2$.

Par contre TAKEYA et YASAWA (34) (35) (36) étudiant, aux températures de 78°K et 300°K, d'une part une famille de pyrocarbones ordinaires, d'autre part du pyrocarbone dopé à l'azote n'ont pas trouvé une loi monotone en fonction de l'induction magnétique, leurs résultats ressemblant au commencement d'un effet oscillatoire.

De même ZANCHETTA et col.(37) ont obtenu une courbe non monotone de la magnétorésistance négative sur un pyrocarbone déposé à 2100° pour une induction magnétique pouvant atteindre 70 KG et à la température de 4,3°K.

β) magnétorésistance positive

KLEIN (28) a étudié à température ambiante une série d'échantillon déposés de 2100 à 2500°. Il a trouvé $n = 2$.

GROMB (30) a trouvé un résultat semblable avec des valeurs de n décroissante de 2, à 1,75 lorsque HTT augmente de 2100 à 3000° C.

Ceci s'explique par le fait que la mobilité des porteurs croit avec la température de traitement : la condition $\mu B < 1$ relative à l'approximation des champs faibles n'est plus satisfaite et les résultats sont semblables à ceux observés dans les graphites. Pour ces derniers, un cas particulier interessant est celui des travaux de McCLURE et SPRY (33) qui ont trouvé une magnétorésistance linéaire sur un monocristal de graphite à 4,2°K et en présence de champ magnétique fort.

c) Remarques sur les interprétations

α) magnétorésistance positive

KLEIN (29) a expliqué quelques propriétés des pyrocarbones en se situant dans le cadre du modèle à 2 bandes défini précédemment et en utilisant des surfaces d'énergie cylindriques dont l'axe est perpendiculaire au plan de dépôt.

Dans le cas plus favorable du graphite et des pyrographites, la magnétorésistance a été largement interprétée, en particulier par Mc CLURE, SPRY, SPAIN et col. (32) (33)(38).

β) Magnétorésistance négative dans le cas d'échantillons homogènes :

Les interprétations de la magnétorésistance négative, basées l'une sur l'augmentation du nombre de porteurs, l'autre sur l'augmentation de leur mobilité, ont été appliquées à certains carbones.

Modèle de YAZAWA (39), UEMURA et INQUE (40) dans le but d'expliquer les travaux de KINCHIN (41) utilisent un modèle bi-dimensionnel de WALLACE modifié par l'hypothèse d'une augmentation du nombre de porteurs de charge en présence d'un champ magnétique par le processus décrit en (I-2). Mc CLURE (38) montrera d'ailleurs plus tard qu'un tel modèle n'est pas applicable au graphite.

YASAWA l'a cependant choisi dans le cas plus favorable des pyrocarbones. Ce modèle repose essentiellement sur l'existence de niveaux accepteurs, juste au-dessus du niveau de Fermi ; en ajustant la position et la concentration des niveaux accepteurs, YASAWA interprète les résultats expérimentaux. Cependant, on peut remarquer que la concentration des accepteurs est si élevée ($Nb_{accep.} = 10^{20}/cm^3$) que le modèle invoquant des niveaux d'énergie discrets, ne peut être utilisé. Il faudrait admettre l'existence d'une bande d'impureté qui rend de suite l'interprétation plus difficile (42).

Modèle de FUJITA (43). Ce modèle est basé sur l'augmentation de la mobilité des porteurs liée à un effet de taille des cristallites (cf.I.2). Dans le cas particulier de graphites imparfaits (15) ou de carbones bien graphités, pour lesquels un "scattering process" a lieu à la frontière du cristallite, il est en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux obtenus à très basse température (44).

En particulier, il prévoit l'allure parabolique de la magnétorésistance négative en présence d'un faible champ magnétique, mais cette caractéristique n'est pas exclusive de ce modèle seul.

d) Anisotropie de la magnétorésistance

Peu de travaux ont été effectués dans le cas des pyrocarbones.

- KLEIN (29), étudiant un pyrocarbone bien graphité et présentant une magnétorésistance positive a trouvé que la figure de rotation permettant de passer de la magnétorésistance transverse à la magnétorésistance longitudinale suit une loi en cosinus carré de l'angle.

- YASAWA (36) a obtenu des résultats relatifs à une magnétorésistance qui n'était pas purement positive. Ils sont très différents de ceux de KLEIN et ne peuvent être expliqués par la relation tensorielle classique.

- SPAIN, UBBELHODE et YOUNG (32) ont étudié sur des pyrographites les figures de rotations correspondant au passage de la grande magnétorésistance transverse (coefficient A_{13}) à la magnétorésistance longitudinale (coefficient A_{11}) d'une part et à la petite magnétorésistance transverse (coefficient A_{12}) d'autre part. Ils ont observé d'une part des valeurs du même ordre de grandeur entre A_{12} et A_{11} mais très faible devant A_{13}. La première constatation est en accord avec l'isotropie dans les plansgraphitiques. Ils expliquent la seconde en particulier par un angle de désorientation moyen des cristallites par rapport au plan de dépot. Autrement dit, la magnétorésistance longitudinale expérimentale ne serait pas nulle car il subsisterait suffisamment de cristallites dont les plans graphitiques feraient un angle non nul avec l'induction magnétique pour observer une sorte de magnétorésistance transverse résiduelle. Ceci montre que l'on peut assimiler la mesure des magnétorésistances transverses et longitudinale aux coefficients tensoriels correspondant uniquement dans le cas du monocristal de graphite, comme nous l'avons développé dans la première partie de ce travail. D'autre part, ils utilisent ce même raisonnement pour expliquer la loi en $\cos^{1,8} \phi$ qu'ils obtiennent au lieu de la loi théorique en $\cos^2 \phi$.

I.3.3-Définition de la présente recherche

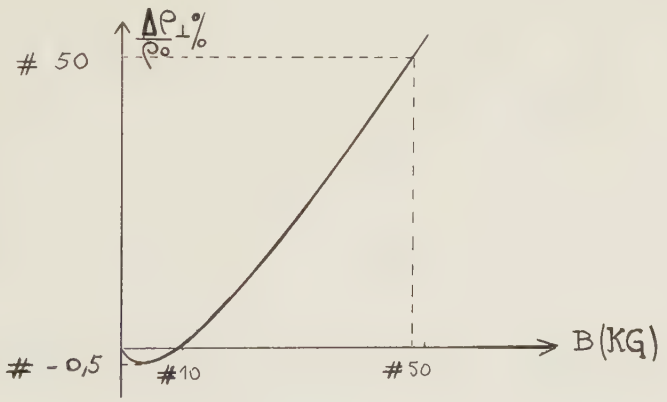
Lors de l'évolution du degré de graphitation, les résultats expérimantaux montrent la coexistence d'une magnétorésistance positive classique et d'une magnétorésistance négative anormale qui disparait au fur et à mesure qu'apparait une structure bien ordonnée.

Par conséquent, il apparait intéressant d'essayer de trouver comment la magnétorésistance négative est liée au désordre dans les structures carbonées. D'autre part la magnétorésistance négative ne s'expliquant pas par la théorie phénoménologique classique, on peut penser que deux phénomènes différents se superposent et par conséquent, il peut y avoir une certaine contribution de magnétorésistance positive même si la magnétorésistance globale expérimentale est négative.

Afin de mieux étudier la magnétorésistance positive ou négative d'un pyrocarbone nous nous proposons d'essayer de séparer les composantes positive et négative dans le phénomène global. L'idée immédiate est d'utiliser une hypothèse d'additivité pure et simple entre les deux composantes sans fonction d'interaction. Il nous faut alors définir le type d'échantillon sur lequel nous désirons travailler.

Il nous a paru souhaitable d'étudier un échantillon tel que la magnétorésistance transverse en fonction de l'induction magnétique ait à 4,3° K l'allure représentée sur la schéma ci-dessous où l'on observe :

Figure (2)



- à faible induction, une magnétorésistance négative passant par un minimum.

- à forte induction, une magnétorésistance fortement positive de telle sorte que la composante négative puisse être négligée.

Lorsque nous considérons l'évolution en fonction de l'induction de la magnétorésistance transverse relative au pyrocarbone 2100°, puis celle du même matériau retraité à 2900° (45) on est en droit de penser qu'il sera possible par un traitement thermique convenable d'obtenir une courbe semblable à celle présentée sur le schéma ci-dessus.

L'étude d'une telle courbe semble en effet intéressante car, à partir de 20 KG, la composante négative, si elle existe, constitue une très faible perturbation de la composante positive et doit pouvoir être négligée. L'hypothèse d'additivité est applicable et la magnétorésistance positive devrait être alors interprétée dans le cadre du modèle à 2 bandes d'énergie.

Bien que la théorie de TOYOSAWA n'ait été utilisée jusqu'ici que dans certains semi-conducteurs et les alliages dilués, on peut espérer l'appliquer pour expliquer la magnétorésistance négative dans le cas des pyrocarbones dans la mesure où la magnétorésistance de ceux-ci présenterait de fortes analogies avec celle des semi-conducteurs dopés précités.

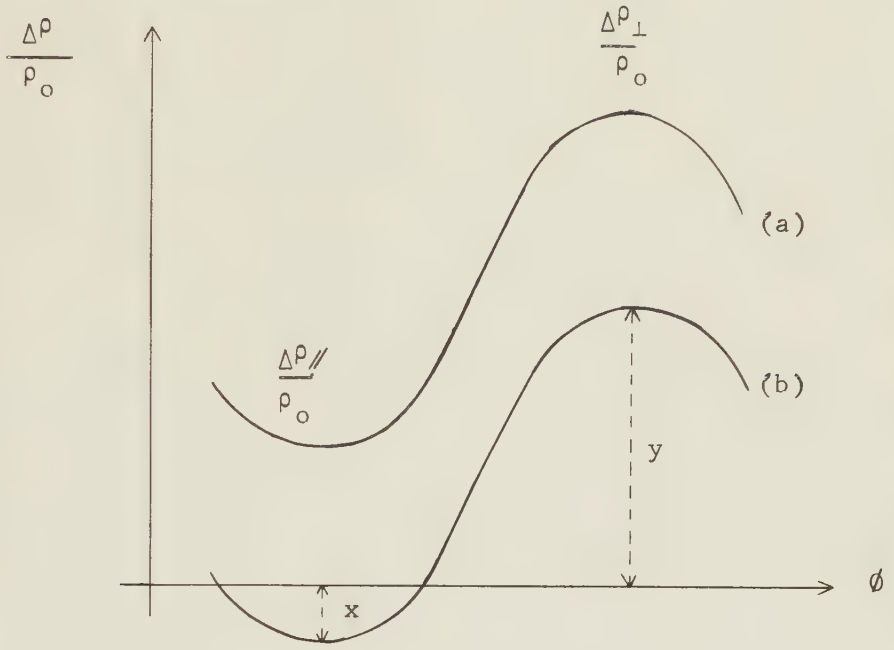
D'autre part, il n'est pas impensable de trouver des spins délocalisés au niveau des imperfections de réseau dans les pyrocarbones dont la magnétorésistance négative disparait comme dans le cas du TELLURE (46) lors d'un retraitement thermique.

Il faudra vérifier en particulier l'isotropie de la magnétorésistance négative comme dans certains semi-conducteurs (19,24). Dans ce cas, la séparation de la magnétorésistance en ses deux composantes sera aisée.

En effet, si à forte induction magnétique, on obtient une figure de rotation du type (a) fig.(3), à faible induction magnétique, on peut espérer obtenir une courbe du type (b). Sur cette courbe, la composante positive de la magnétorésistance longitudinale est négligeable et par conséquent on obtient directement la composante négative en mesurant x. La composante positive transverse pure sera égale à x + y.

Finalement nous serons amenés à faire des études en fonction de l'induction magnétique et de la température davantage pour situer le problème tandis que l'étude des figures de rotation constituera la partie la plus importante de notre expérimentation.

Figure 3



- 2ème Partie -

ETUDE EXPERIMENTALE

II.1 ETUDE PRELIMINAIRE : CHOIX DE L'ECHANTILLON

Nous disposons d'une plaque de pyrocarbone déposé à 2100° fournie par la Société CARBONE-LORRAINE, de dimension 210 mm x 55 mm x 7 mm. La taille moyenne d'un échantillon prélevé dans cette plaque est de 14 mm x 3 mm x 1 mm.

a) Il est nécessaire de vérifier l'homogénéité de la plaque en mesurant par exemple, la distance réticulaire $\overline{d_{oo2}}$ par diffraction des rayons X. Cette détermination effectuée sur 28 échantillons indique un écart maximum égal à 0,002 Å par rapport à la valeur moyenne de $\overline{d_{oo2}}$ qui est de 3,412 Å.

b) La plaquette est découpée selon le schéma classique suivant (fig. 4) :

sondes a, b : amenées de courant

c, d,e : mesure du potentiel de Hall

f, g : mesure de la résistivité

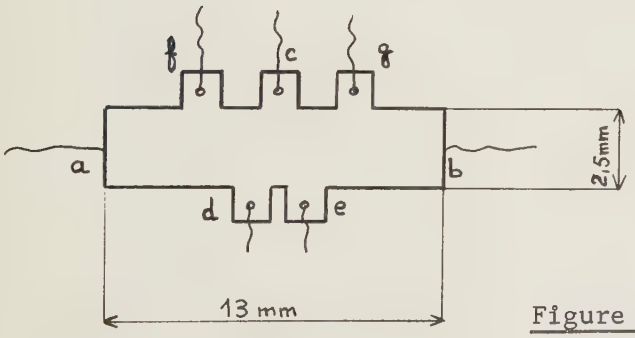


Figure 4

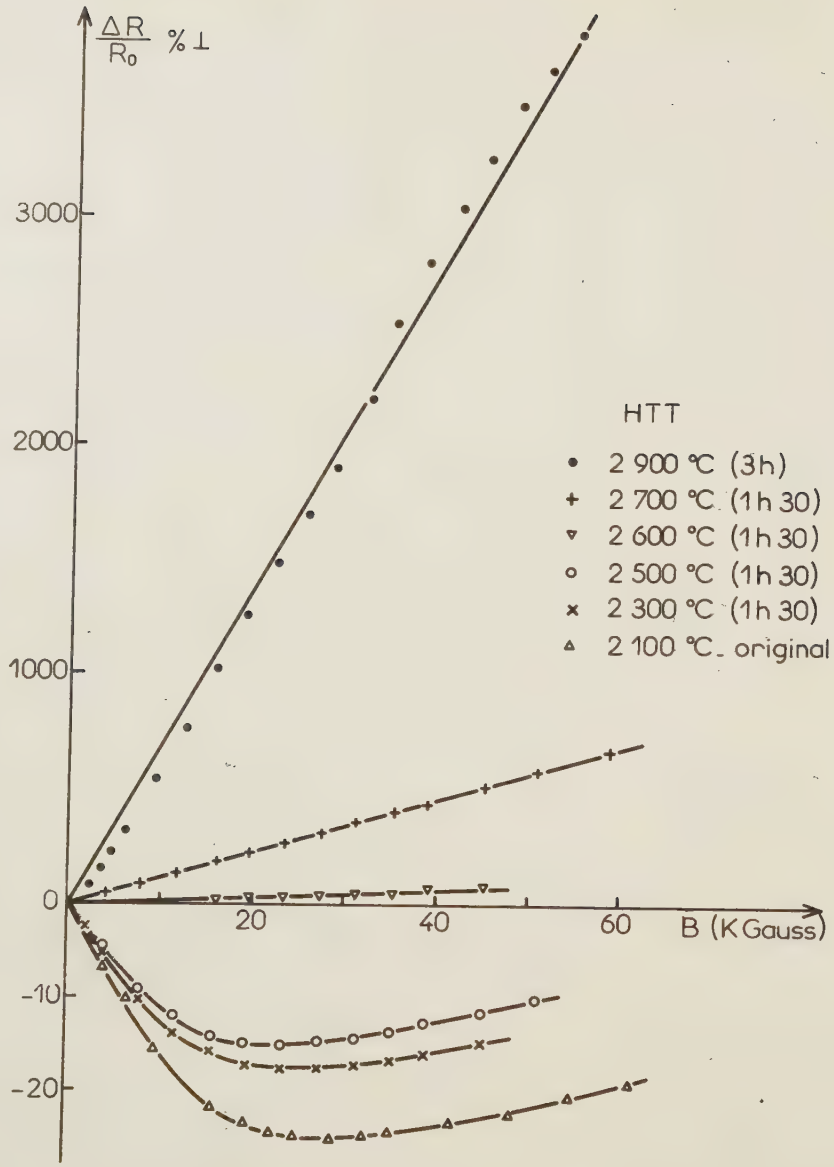

ΔR/R₀ % ⊥
3000
2000
1000
0
-10
-20
20
40
60
B (K Gauss)
HTT
2 900 °C (3h)
2 700 °C (1h 30)
2 600 °C (1h 30)
2 500 °C (1h 30)
2 300 °C (1h 30)
2 100 °C original

Fig. 5

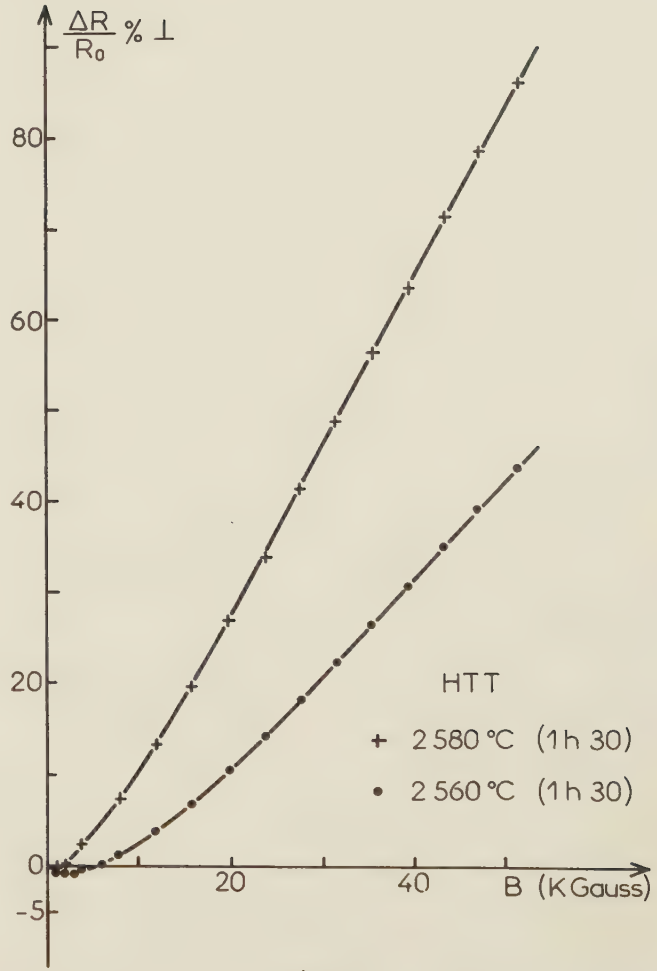

ΔR/R₀ % ⊥
80
60
40
20
0
-5
20
40
B (K Gauss)
HTT
2 580 °C (1h 30)
2 560 °C (1h 30)

Fig. 6

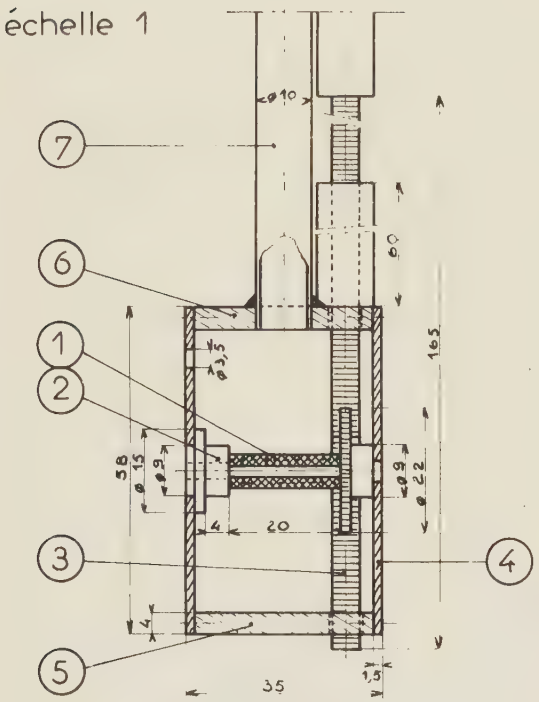
Les contacts sont obtenus par dépôt électrolytique de cuivre sur les faces a et b de la plaquette et dans les trous c, d, e, f, g, de diamètre $\emptyset = 0,4$ mm.

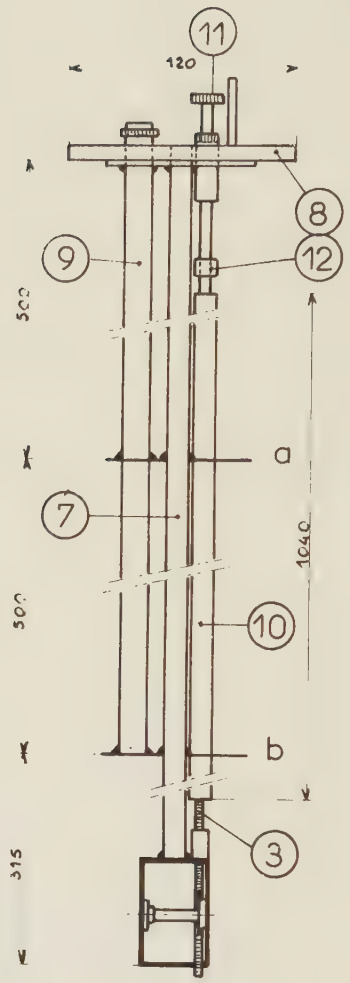
c) Afin d'obtenir une courbe expérimentale du type défini en (I.3.3) par un retraitement thermique convenable, nous avons soumis 4 échantillons respectivement aux températures 2300°C, 2600°C, et 2700°C, la durée du traitement étant toujours égale à 1 h 30.

L'utilisation d'un appareillage décrit par BELOUGNE (45) a permis d'obtenir les courbes représentées sur la fig.(5). L'examen de cette figure montre que la courbe du type désiré se trouve dans la gamme de température allant de 2500° à 2600°C. Nous avons donc retraité 2 échantillons de pyrocarbone 2100° respectivement aux températures de 2560° et 2580° pendant 1 h 30. Sur les deux échantillons la courbe de magnétorésistance en fonction de l'induction magnétique fig.(6) présente une partie négative à faible induction, et une partie positive à forte induction. Pour la suite de notre étude nous avons choisi d'utiliser l'échantillon retraité à 2560° pendant 1 h 30 dont la courbe de magnétorésistance recoupe l'axe des abscisses à 5000 gauss. Cet échantillon se caractérise en particulier par une distance réticulaire $\overline{d_{oo2}} = 3,371$ Å et par un angle moyen de désorientation des cristallites par rapport à la normale à la plaquette $\theta = 16°14'$. Ce dernier résultat a été obtenu au moyen de mesure de variations thermiques du diamagnétisme (47).

bas de la cellule

échelle 1





vue d'ensemble

échelle 1/3

Fig. 7

II.2 TECHNIQUE EXPERIMENTALE

II.2.1 Mesures aux inductions magnétiques élevées

a) Le cryoaimant utilisé est celui décrit par BELOUGNE (45). Nous en rappelons simplement ici le schéma de principe. Il se compose de deux vases "Dewar" concentriques en acier inoxydable dans lesquels seront introduits les fluides cryogéniques convenables. La bobine supraconductrice crée une induction magnétique verticale (induction maximum : 60 KG) dans la région située à l'extrémité inférieure du Dewar intérieur dans lequel on introduira la canne porte-échantillon.

b) Canne porte échantillon

Notre but étant de faire varier l'angle formé par l'induction magnétique et la normale à la plaquette, l'axe de rotation est nécessairement horizontal. Nous avons donc réalisé le dispositif représenté sur la fig.(7).

L'échantillon est collé sur un plateau (1) en téflon lui-même maintenu par 4 vis sur la pièce (2) en laiton, usinée d'un seul bloc. Elle comporte un plateau, une roue dentée entrainée par la crémaillère (3), 2 axes servant de supports dont l'un comporte un trou servant de passage aux fils venant de l'échantillon. Enfin elle est supportée par deux plaques en laiton (4) elles-mêmes reliées par les plaques (5) et (6) percées d'un trou laissant le passage de la crémaillère.

La cellule porte échantillon ainsi décrite est solidaire d'un tube (7) en acier inox, lui-même brasé sur la pièce (8) également en acier inox servant de couvercle du cryostat central.

Le fluide cryogénique est introduit par le tube (9) muni d'un dispositif classique de passage étanche.

La crémaillère (3) prolongée par le tube (10) en acier inox est actionnée au moyen de la vis (11) par l'intermédiaire du dispositif (12) transformant le mouvement de rotation de la vis en mouvement de translation pour la crémaillère.

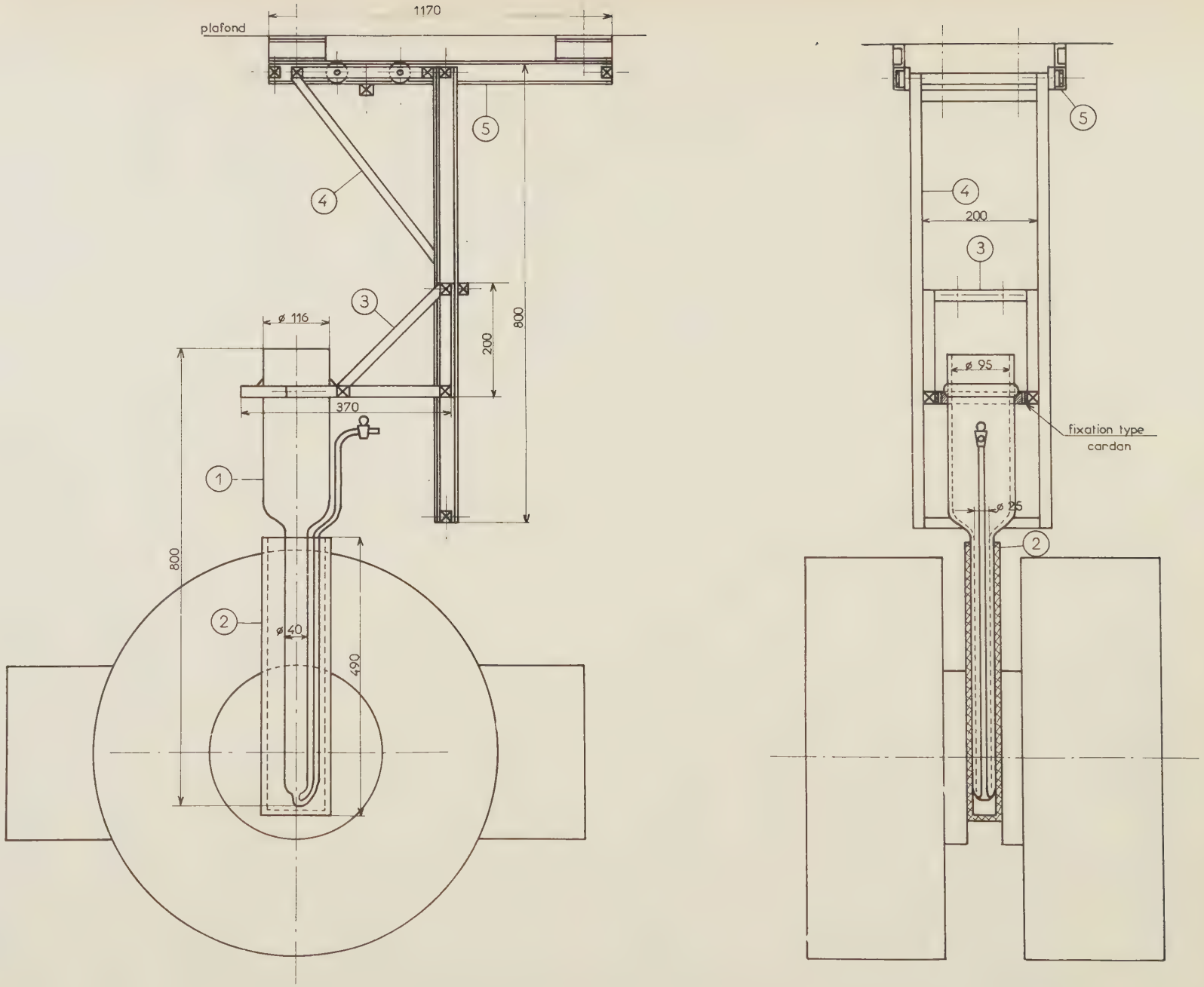

plafond
1170
5
4
3
ø 116
200
800
370
1
800
2
ø 40
490
5
4
200
3
ø 95
fixation type
cardan
ø 25
2

Fig. 8

L'angle de rotation Ø de l'échantillon est connu par le nombre de tours effectués par la vis (11) (Ø = 180° correspond à 33 tours).

Les fils de mesures, les fils de thermocouple et les fils de thermomètre au germanium passent dans le tube (7). Un passage étanche est prévu pour tous les fils dans le plateau (8).

Afin d'éviter des pertes thermiques par rayonnement, nous avons disposé deux écrans thermiques (a) et (b).

II.2.2 Mesures aux faibles inductions magnétiques (fig. (8) et (9))

Pour ces études nous avons utilisé un électroaimant VARIAN (12 pouces) auquel nous avons associé un Dewar en verre (1) à doubles parois argentées.

Lorsque l'entrefer est égal à 60 mm, l'induction magnétique maximum est de 11000 Gauss.

Une boîte en klégecel (2) sert de garde d'azote liquide lorsque le fluide cryogénique dans le Dewar est de l'hélium liquide.

a) Le Dewar (fig.8) possède une collerette qui lui permet de reposer sur un support (3) qui peut coulisser verticalement à l'interieur de la potence (4), elle même pouvant se déplacer sur des rails (5) fixés au plafond. Le dispositif permet de positionner avec précision la queue du dewar entre les pièces polaires. En outre le dewar peut facilement être dégagé des pièces polaires tout en restant sur son support. La contenance du dewar est d'environ 2,5 l. En général on le remplit d'environ 1 litre d'hélium, quantité qui assure un fonctionnement d'environ 5 H.

b) Canne porte échantillon (fig.9). L'espace utilisable fonction du diamètre interieur de la queue du dewar (Ø 24 mm) se trouve réduit. Cependant la direction horizontale du champ magnétique rend plus simple la conception de ce nouvel ensemble.

Le plateau porte-échantillon en nylon (1) est fixé à la tige en acier inox (2) par les tiges et la bague (3) en nylon (système permettant un positionnement commode de l'échantillon). La tige (2) (Ø 3 mm) est fixée au tube (4) par les pièces (5). Ceci permet de régler la profon-

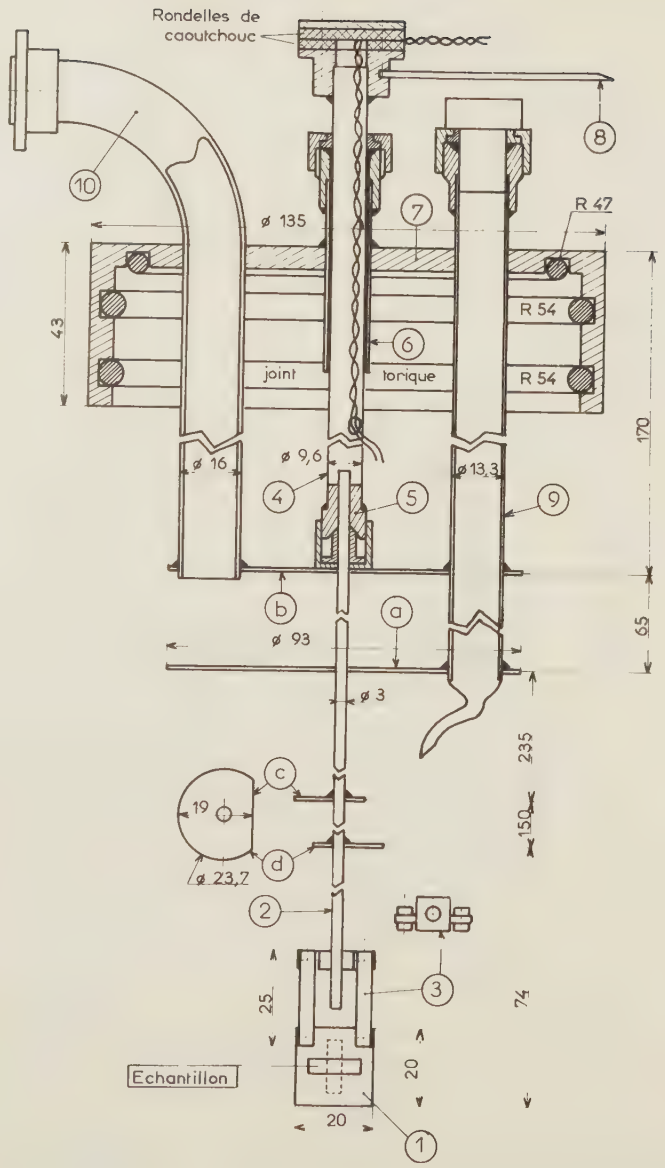


Fig. 9

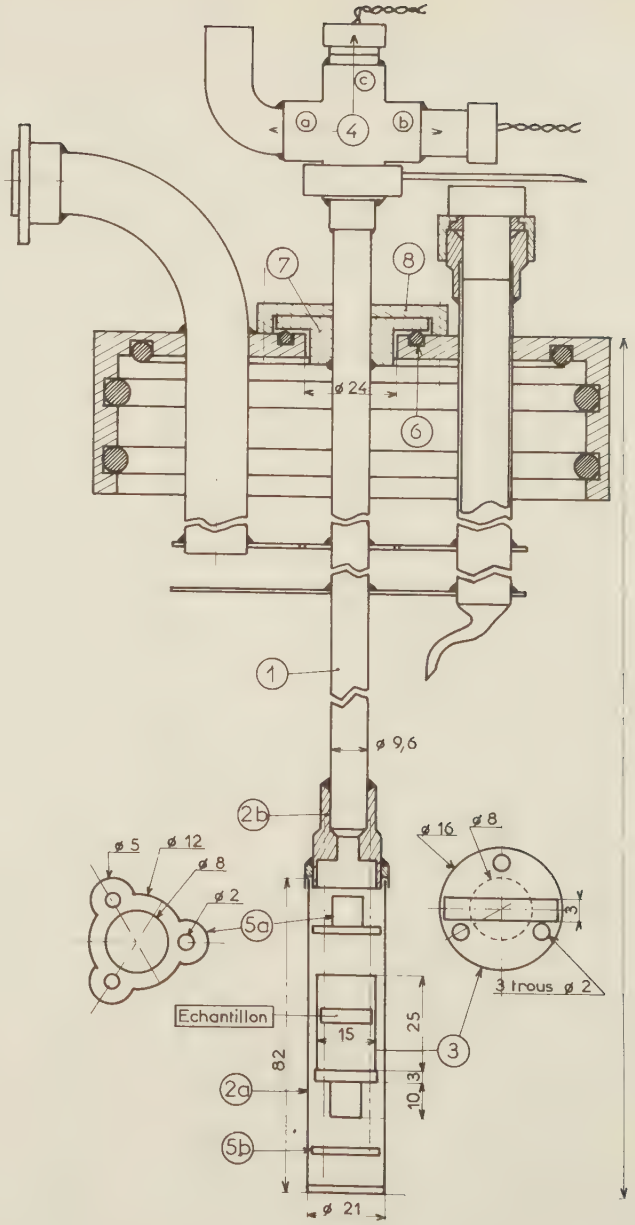


Fig. 10 - Cellule de variations thermiques

deur de pénétration de l'échantillon dans la queue du cryostat, et d'autre part de remplacer facilement la tige en cas de rupture de cette dernière. Le tube (4) est guidé en rotation par le tube (6) brasé au chapeau en acier inox (7) du Dewar. L'angle de rotation est repéré par l'index (8). Comme dans l'ensemble précédent nous avons disposé 4 écrans thermiques. Les écrans a et b sont brasés l'un au tube de transfert (9) et l'autre à la fois au tube de transfert et au tube de récupération (10). Ils sont percés au centre de sorte à laisser passer la tige (2). Remarquons enfin que l'étanchéité du couvercle (7) est assurée par 3 joints torriques.

c) Lorsqu'on désire effectuer des mesures à des températures variables supérieures à 4,2°K, le dispositif précédent doit être largement modifié. A la fois pour assurer la stabilité de la température et pour éviter une trop grande consommation d'hélium liquide, il était nécessaire d'isoler l'échantillon dans une enceinte sous une faible pression d'hélium gaz. Ainsi pour une pression donnée de gaz d'échange, il est facile de contrebalancer la fuite thermique correspondante par un léger chauffage pour obtenir une température d'équilibre T que l'on peut faire varier dans une certain domaine (qui est fonction de la pression) tout en restant dans des limites raisonnables de consommation d'hélium.

Schématiquement cette canne porte-échantillon (fig.10) est constituée d'un tube en acier inox (1) terminé par la cellule proprement dite (2) à l'intérieur de laquelle est placé le plateau porte-échantillon (3). Le tube est terminé par une pièce (4) dont la sortie (a) permet d'introduire une pression convenable de gaz d'échange. Les sorties (b) et (c) munies de passages étanches servent de passage aux fils de thermocouple , du thermomètre au germanium , de résistance chauffante et de mesure.

La cellule (2) est constituée de 2 parties (a) et (b). La pièce (a) est un cylindre à fond plat qui vient s'engager dans la gorge circulaire, aménagée dans la partie inférieure de la pièce (b) brasée sur le tube. Une soudure à l'alliage de Wood pratiquée au niveau de cette gorge permet d'assurer la fermeture et l'étanchéité de la cellule.

Le plateau porte-échantillon (3) est taillé dans un bloc de cuivre dont la partie inférieure est un cylindre plein sur lequel est bobiné un fil résistant de constantan . L'échantillon est isolé électriquement de la masse de cuivre par un vernis isolant servant en même temps à le coller sur le plateau et à assurer une bonne conduction thermique. Trois tiges filetées vissées dans la pièce (2 b) maintiennent cet ensemble verticalement à l'intérieur d'une enceinte en laiton (2).

Les pièces (5) (a) et (b) en nylon servent au centrage du plateau porte échantillon en évitant son contact direct avec (2a). Seuls le gaz d'échange et les tiges filetées contribuent aux fuites thermiques.

Une dizaine de centimètres du fil de thermocouple est bobiné sur le cylindre plein de la pièce (5a) de manière à ce que la soudure soit bien à la température du plateau porte-échantillon.

Remarquons que le chapeau du dewar a été modifié par rapport au précédent. Le trou central (Ø 24 mm)permet de dégager totalement la canne porte échantillon et d'utiliser le même chapeau pour d'autres types de canne.

L'étanchéité est assurée par un joint torrique placé dans la gorge (6) et la bague (7) brasée sur le tube(1),le tout étant serré au moyen de 4 vis par la pièce(8). En jouant sur ces vis, la libre rotation de la canne porte cellule reste assurée.

II.2.3 Variation et mesure de la température

Outre la température ambiante de 300°K et les points fixes de 90°K (oxygène liquide), 78 °K et 4,3°K, nous avons exploré le domaine allant de 1,5°K à 65°K.

Pour $T < 4,3$°K on est amené à pomper sur le bain d'hélium

Pour $4,3 < T$°K $\leqslant 40$ on utilise la cellule de variationsthermiques.

Pour T = 50°K on pompe sur l'azote liquide jusqu'à la solidification.

Pour T = 63°K on pompe sur l'azote liquide de sorte à se maintenir au point triple.

La mesure de la température se fait au moyen d'un thermocouple Au-Fe (0,03 % atomes)-chromel P et d'un thermomètre à résistance de germanium dopé à l'arsenic préalablement étalonné par le constructeur. Ce dernier est sensible à l'influence du champ magnétique (45) (effet de magnétorésistance), et ne peut être utilisé que pour étalonner le thermocouple. En définitive, on se servira toujours du thermocouple sans doute moins sensible, mais moins fragile, moins couteux et insensible à l'action du champ magnétique (48).

II.3 RESULTATS EXPERIMENTAUX

II.3.1- Variations thermiques de la résistivité électrique et de L'effet Hall

Afin de situer dans le contexte général des études sur les pyrocarbones l'échantillon sélectionné, nous avons mesuré dans la direction du plan de départ (cf. paragraphe I.1.1a) la résistivité ρ^o et la constante de Hall (R_{H_o}) à diverses températures (Tableau 1 et fig.11).

Les valeurs obtenues s'insèrent bien parmi les résultats de Gromb (30). Les valeurs de R_{H_o} ont été obtenues par extrapolation à induction nulle du coefficient de Hall sur les courbes $R_H = f(B)$ (Tableau 2 et fig.12), où l'on remarque que la constante de Hall varie très peu en fonction de l'induction magnétique.

II.3.2 - Variations thermiques de la magnétorésistance

A - Mesures à inductions fortes

Nous présentons sur le tableau (3) et la figure (13) les courbes de magnétorésistance transverse à 4,3°K et 1,6°K ainsi que la courbe de magnétorésistance longitudinale à 4,3°K.

En examinant la figure 13, nous remarquons d'une part qu'il n'y a pas de variation importante entre les courbes à 1,6°K et 4,3°K et d'autre part que le maximum de magnétorésistance négative longitudinale à 4,3°K intervient à une induction magnétique nettement plus élevée que pour la magnétorésistance négative transverse.

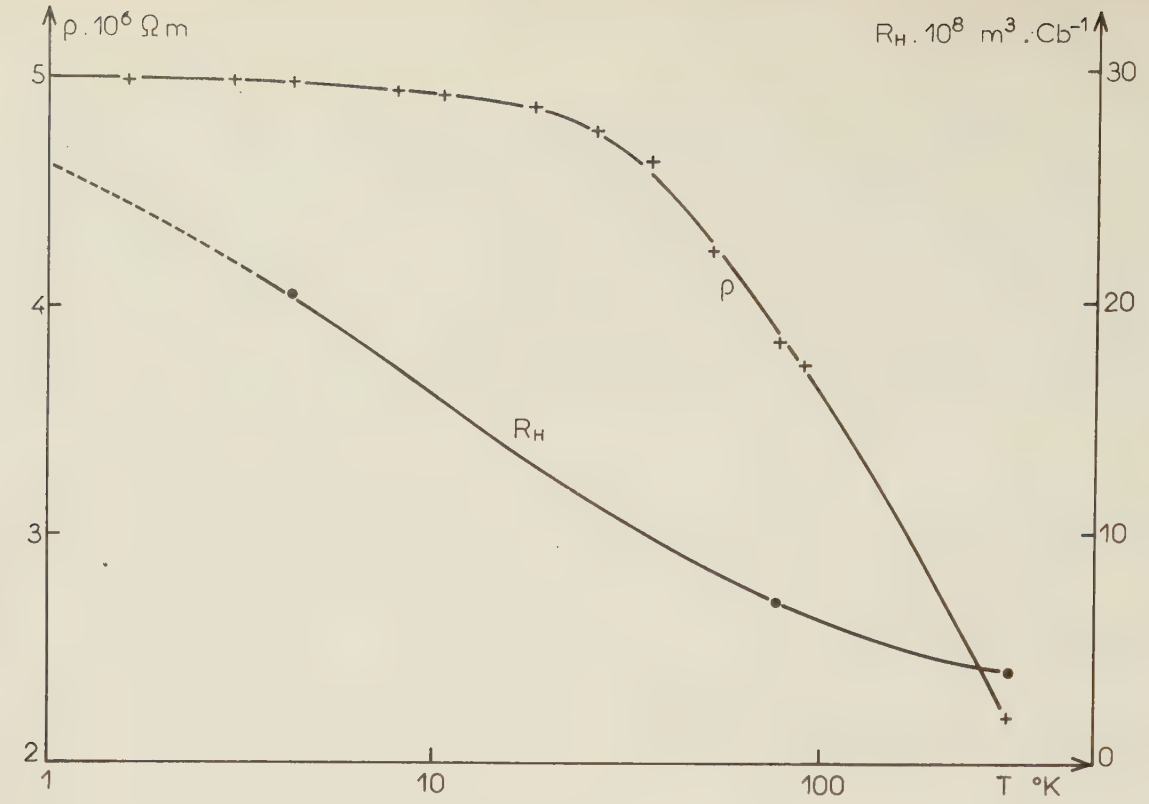

ρ . 10⁶ Ω m
R_H . 10⁸ m³ . Cb⁻¹
5
4
3
2
30
20
10
0
ρ
R_H
1
10
100
T °K

Fig. 11

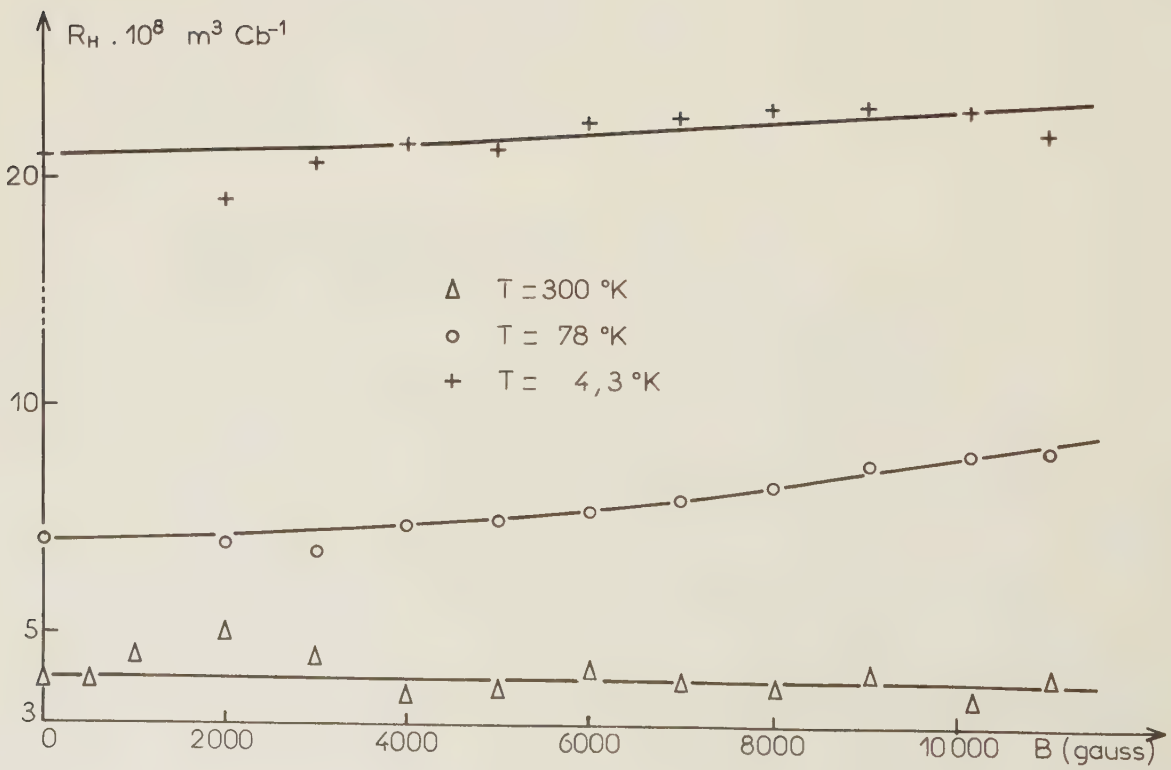

R_H . 10⁸ m³ Cb⁻¹
20
10
5
3
Δ T = 300 °K
o T = 78 °K
+ T = 4,3 °K
0
2000
4000
6000
8000
10 000
B (gauss)

Fig. 12

T°K	Log_{10} T	$\rho(10^6\ \Omega.m)$	$RH_o(10^8\ m^3\ Cb^{-1})$
300	2,47	2,20	4,0
90	1,95	3,78	-
78	1,89	3,84	7,0
50	1,69	4,23	-
36	1,55	4,62	-
26	1,41	4,75	-
18	1,25	4,86	-
10,5	1,02	4,92	-
8	0,90	4,93	-
4,3	0,63	4,97	20,5
3	0,47	4,98	-
1,6	0,20	4,98	-

Tableau 1

T° K / B(gauss)	300	78	4,2
11 000	4,08	9,03	20,9
10 150	3,60	8,88	21,4
9,050	4,12	8,65	21,5
8 025	3,79	8,20	21,5
7 000	3,90	7,91	21,3
6 000	4,21	7,59	21,2
5 000	3,80	7,38	20,6
4 000	3,71	7,34	20,7
3 000	4,52	6,73	20,3
2 000	5,02	6,93	19,5
500	3,46	--	--

Tableau 2

$R_H.10^8 Cb^{-1}m^3 = f(B)$

à diverses températures

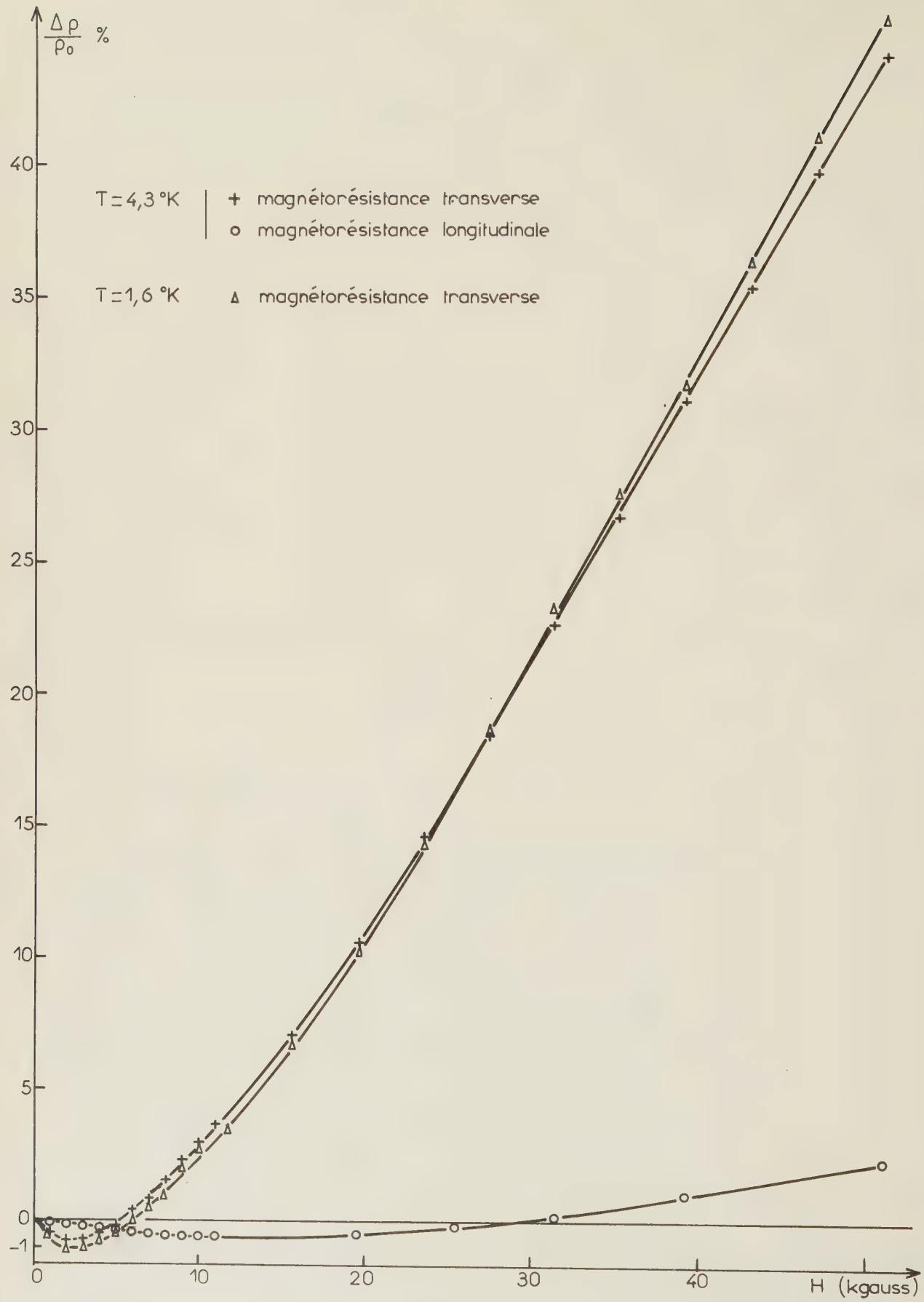

Δρ/ρ₀ %
T = 4,3 °K
+ magnétorésistance transverse
o magnétorésistance longitudinale
T = 1,6 °K
Δ magnétorésistance transverse
40
35
30
25
20
15
10
5
0
-1
0
10
20
30
40
H (kgauss)

Fig. 13

B_{Gauss}	$\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}$ % (4,3°K)	$\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}$ % (1,6° K)	$\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ % (4,3°K)
786	- 0,36	- 0,53	
1 000	- 0,43		- 0,03
2 000	- 0,72	- 1,10	- 0,11
2 358		- 1,16	
3 000	- 0,68		- 0,21
3 144		- 0,96	
4 000	- 0,48	- 0,80	- 0,30
4 715			
5 000	- 0,15	- 0,49	- 0,39
5 895		0,00	
6 000	0,48		- 0,43
7 000	0,87	0,60	- 0,49
7 860	1,35	1,00	
8 025	1,52	1,26	- 0,54
9 050	2,26	2,03	- 0,58
10 150	2,96	2,79	
11 000	3,67		- 0,60
11 789	3,94	3,38	
15 720	7,04	6,77	
19 648	10,58	10,34	- 0,50
23 578	14,42	14,26	
25,548			- 0,20
27 508	18,42	18,53	
31 440	22,57	23,20	0,20
35 367	26,62	27,61	
39 300	30,94	31,68	1,00
43 227	35,25	36,46	
47 156	39,55	40,84	
51 086	43,82	45,18	2,30

Tableau 3

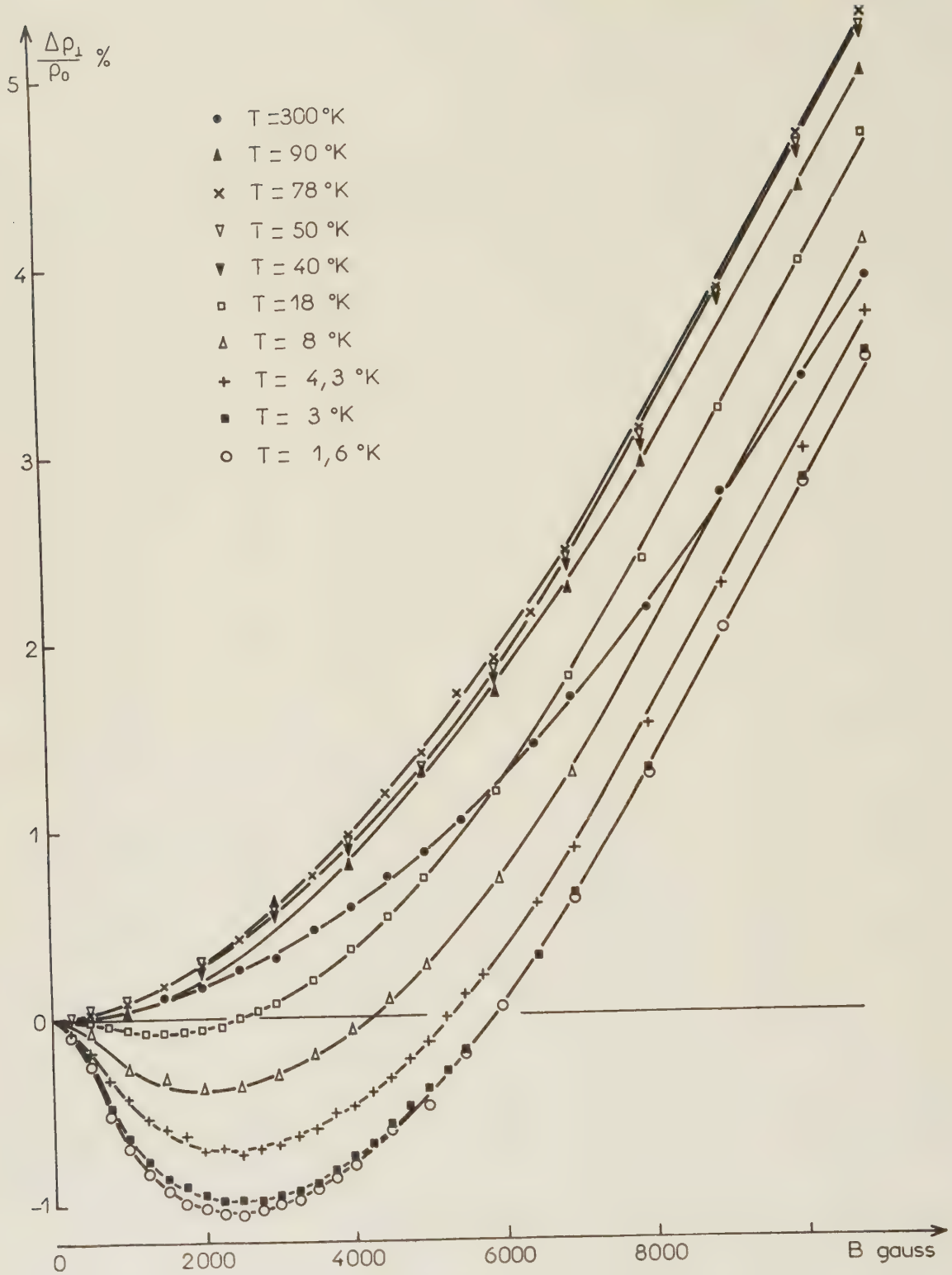

Δρ⊥/ρ₀ %
5
4
3
2
1
0
-1
T =300 °K
T = 90 °K
T = 78 °K
T = 50 °K
T = 40 °K
T =18 °K
T = 8 °K
T = 4,3 °K
T = 3 °K
T = 1,6 °K
0
2000
4000
6000
8000
B gauss

Fig. 14

T°K / B Gauss	300	90	78	50	40	18	8	4,3	3	1,6
250				0,10		- 0,03		- 0,08	-0,09	- 0,09
500	0,02	0,02	0,03	0,05	0,015	- 0,02	- 0,07	- 0,18	-0,30	- 0,35
750						- 0,04		- 0,33	-0,48	- 0,52
1000	0,06	0,03	0,08	0,10	0,055	- 0,06	- 0,27	- 0,43	-0,64	- 0,69
1250						- 0,06		- 0,54	-0,76	- 0,83
1500	0,11		0,17		0,135	- 0,08	- 0,33	- 0,59	-0,86	- 0,92
1750						- 0,08		- 0,63	-0,90	- 0,99
2000	0,16	0,30	0,28	0,29	0,25	- 0,07	- 0,38	- 0,72	-0,95	- 1,02
2250						- 0,05		- 0,70	-0,97	- 1,04
2500	0,25		0,41			- 0,01	- 0,38	- 0,73	-0,98	- 1,04
2750						0,03		- 0,70	-0,98	- 1,03
3000	0,32	0,60	0,57	0,55	0,54	0,07	- 0,31	- 0,68	-0,95	- 1,00
3250								- 0,64	-0,093	- 0,97
3500	0,46		0,75			0,19	- 0,22	- 0,60	-0,88	- 0,92
3750								- 0,52	-0,82	- 0,86
4000	0,58	0,80	0,96	0,93	0,90	0,35	0,07	- 0,48	-0,75	- 0,80
4250								- 0,41	-0,68	
4500	0,72		1,18			0,52	0,09	- 0,34	-0,59	- 0,61
4750								- 0,24	-0,49	
5000	0,86	1,30	1,39	1,32	1,30	0,72	0,26	- 0,15	-0,40	- 0,49
5250								- 0,02	-0,30	
5500	1,03		1,70					+ 0,10	-0,20	- 0,21
5750								+ 0,20		
6000	1,18	1,70	1,88	1,83	1,79	1,18	0,71		+0,03	+ 0,03
6500	1,43		2,12					+ 0,58	+0,31	
7000	1,67	2,25	2,43	2,41	2,39	1,78	1,27	+ 0,87	+0,63	+ 0,60
8025	2,14	2,90	3,070	3,05	3,01	2,40		+ 1,53	+1,27	+ 1,26
9050	2,75		3,82	3,79	3,77	3,18		+ 2,26	+2,03	+ 2,03
10150	3,34	4,35	4,61	4,56	4,53	3,95		+ 2,96	+2,80	+ 2,79
11000	3,86	4,95	5,25	5,17	5,16	4,61	4,05	+ 3,67	+3,45	+ 3,44

Tableau 4

Variations thermiques de la magnétorésistance transverse $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o}$ %

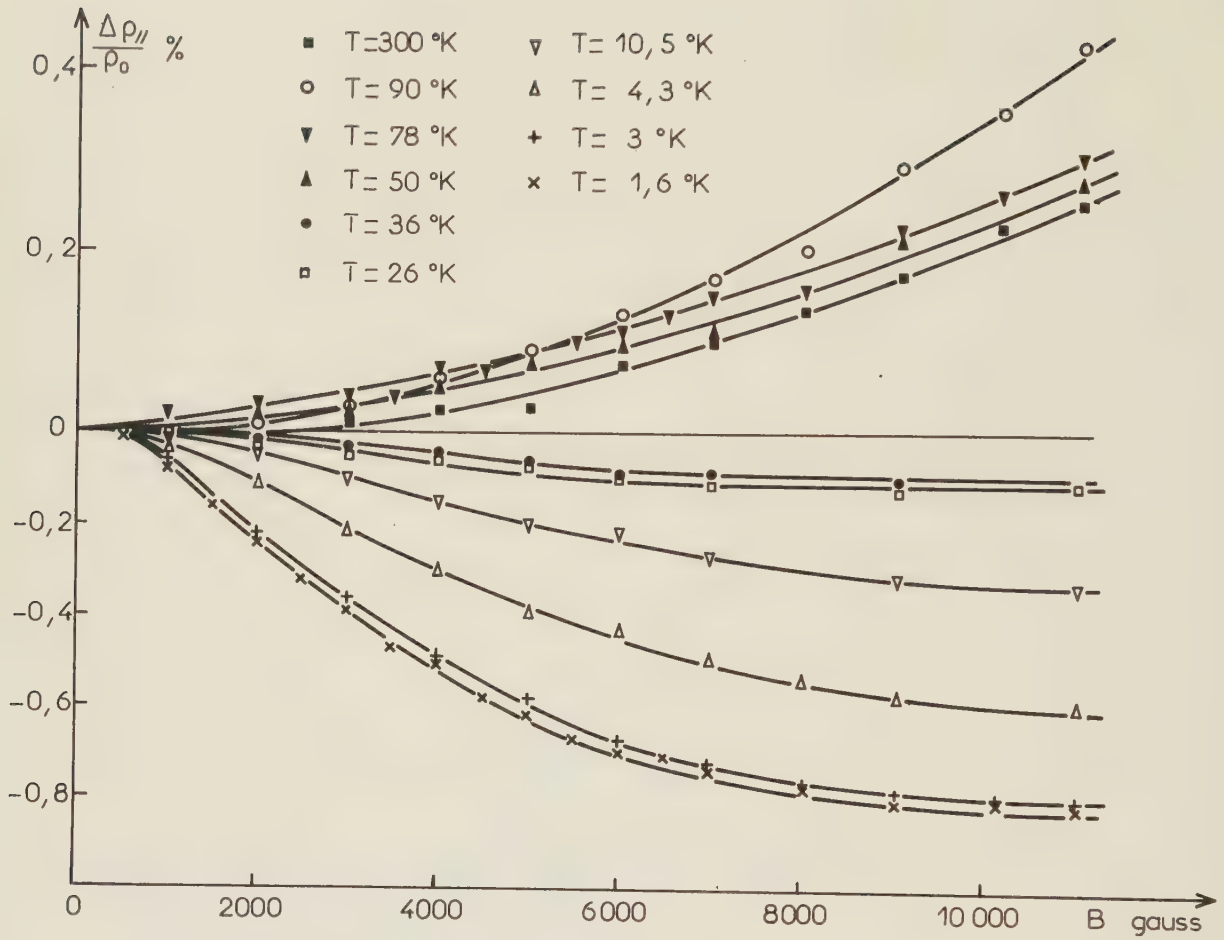

Δρ// / ρ0 %
T=300 °K
T= 90 °K
T= 78 °K
T= 50 °K
T= 36 °K
T= 26 °K
T= 10,5 °K
T= 4,3 °K
T= 3 °K
T= 1,6 °K
0,4
0,2
0
-0,2
-0,4
-0,6
-0,8
0
2000
4000
6000
8000
10 000
B gauss

Fig. 15

T°K / B Gauss	300	90	78	50	36	26	10,5	4,3	3	1,6
250	0,00	0,00								
500	0,00	0,00	0,0							- 0,01
1000	0,00	0,00	0,00	0,002	0,0	-0,013	-0,013	-0,03	-0,06	- 0,08
1500			0,02							- 0,16
2000	0,00	0,01	0,03	0,019	-0,021	-0,030	-0,05	-0,11	-0,22	- 0,24
2500										- 0,32
3000	0,015	0,03	0,04	0,025	-0,032	-0,052	-0,10	-0,21	-0,36	- 0,39
3500			0,04							- 0,47
4000	0,025	0,06	0,07	0,050	-0,043	-0,060	-0,15	-0,30	-0,49	- 0,51
4500			0,07							- 0,58
5000	0,03	0,09	0,09	0,074	-0,065	-0,074	-0,20	-0,39	-0,58	- 0,62
5500			0,10							- 0,67
6000	0,075	0,13	0,11	0,096	-0,094	-0,099	-0,22	-0,43	-0,43	- 0,70
6500			0,13							- 0,71
7000	0,10	0,17	0,15	0,114	-0,086	-0,107	-0,27	-0,49	-0,73	- 0,74
8025	0,135	0,20	0,18					-0,54	-0,77	- 0,78
9050	0,175	0,29	0,22	0,211	-1,03	-0,127	-0,32	-0,58	-0,79	- 0,81
10150	0,225	0,35	0,26						-0,80	- 0,81
11000	0,25	0,42	0,30	0,275	-0,114	-0,115	-0,34	-0,60	-0,80	- 0,82

Tableau 5

Variations thermiques magnétorésistance longitudinale $\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ "%

B - Variations thermiques pour $B \leqslant 11$ K G

a) magnétorésistance transverse (tableau (4) et fig.(14))

Pour les températures de	1,6°K,	3°K,	4,3°K,	8°K,	18°K
	$\pm$ 0,1	$\pm$ 0,1	$\pm$ 0,1	$\pm$ 0,5	$\pm$ 0,5

les courbes présentent un maximum de magnétorésistance négative qui diminue et qui se déplace vers les faibles inductions magnétiques lorsque la température augmente. Pour les températures de 40°K, 50°K, 78°K, 90°K et 300°K, la magnétorésistance négative a disparu. D'autre part la magnétorésistance positive augmente avec la température (T°K = 1,6 - 3 - 4,2 - 8 - 18 - 40 - 50 - 78°) passe par un maximum et diminue à haute température (T°K = 90 - 300). Pour B = 10 000 Gauss ce maximum se situe (fig. 27) vers 70°K.

b) magnétorésistance longitudinale (tableau (5) et fig.(15))

Le changement de signe intervient entre 36°K et 50°K alors qu'il intervient entre 18° et 40°K pour la magnétorésistance transverse. Autrement dit, lorsque la température augmente la magnétorésistance longitudinale négative disparait moins vite que la composante transverse correspondante. D'autre part, la magnétorésistance longitudinale positive ne recommence à décroitre qu'au delà de 90°K.

II.3.3 - Figures de rotation

Pour simplifier l'écriture nous exprimerons par $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$

et $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{\perp}'}{\rho_o}$ les figures de rotation (cf. figure 1) correspondant au passage respectivement de la grande magnétorésistance transverse à la magnétorésistance longitudinale et de la grande magnétorésistance transverse à la petite magnétorésistance transverse.

Nous avons étudié la figure de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ aux températures T°K = 4,3 - 1,6 - 78 - 300 et la figure de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{\perp'}}{\rho_o}$ pour T°K = 4,3.

A - Figures de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$

a) Mesures à 4,3°K

Nous avons classé arbitrairement nos courbes en trois catégories :

- inductions fortes (B(KG) = 55 - 51 - 39,3 - 31,4) (Tableau (6) et fig.(16)). Nous observons d'une part que les courbes restent toujours situées au-dessus de l'axe des abscisses, et d'autre part un écart à la loi en cosinus carré de l'angle : à ce sujet remarquons que les deux branches de la courbe, l'une correspondant à la magnétorésistance transverse et l'autre à la magnétorésistance longitudinale ne sont pas symétriques. Cette dissymétrie s'atténue lorsque l'induction magnétique diminue.

- inductions moyennes : (B(KG) = 25,5 - 19,6 - 11 - 9 - 8) (tableau (7) et figure (17)). La magnétorésistance longitudinale négative apparait et augmente au fur et à mesure que l'induction magnétique diminue. A partir de 11 KG la dissymétrie des branches s'inverse : autrement dit la branche correspondant à la magnétorésistance longitudinale devient plus large que celle correspondant à la magnétorésistance transverse.

- inductions faibles : (B(KG) = 7 - 6 - 5 - 4 - 3 - 2 - 1 - 0,5) (tableau (8) et fig.(18)).

Au fur et à mesure que le champ magnétique diminue, on observe le passage progressif d'une allure en $\cos^2 \phi$ à une allure en $-\cos^2 \phi$. D'autre part, le changement de signe se produit d'abord pour la magnétorésistance longitudinale. A part la courbe à 500 Gauss où la magnétorésistance positive est négligeable, les figures de rotation obtenues semblent résulter de la superposition des composantes positive et négative.

A 500 Gauss, nous avons ainsi mis en évidence l'anisotropie de magnétorésistance négative de notre échantillon.

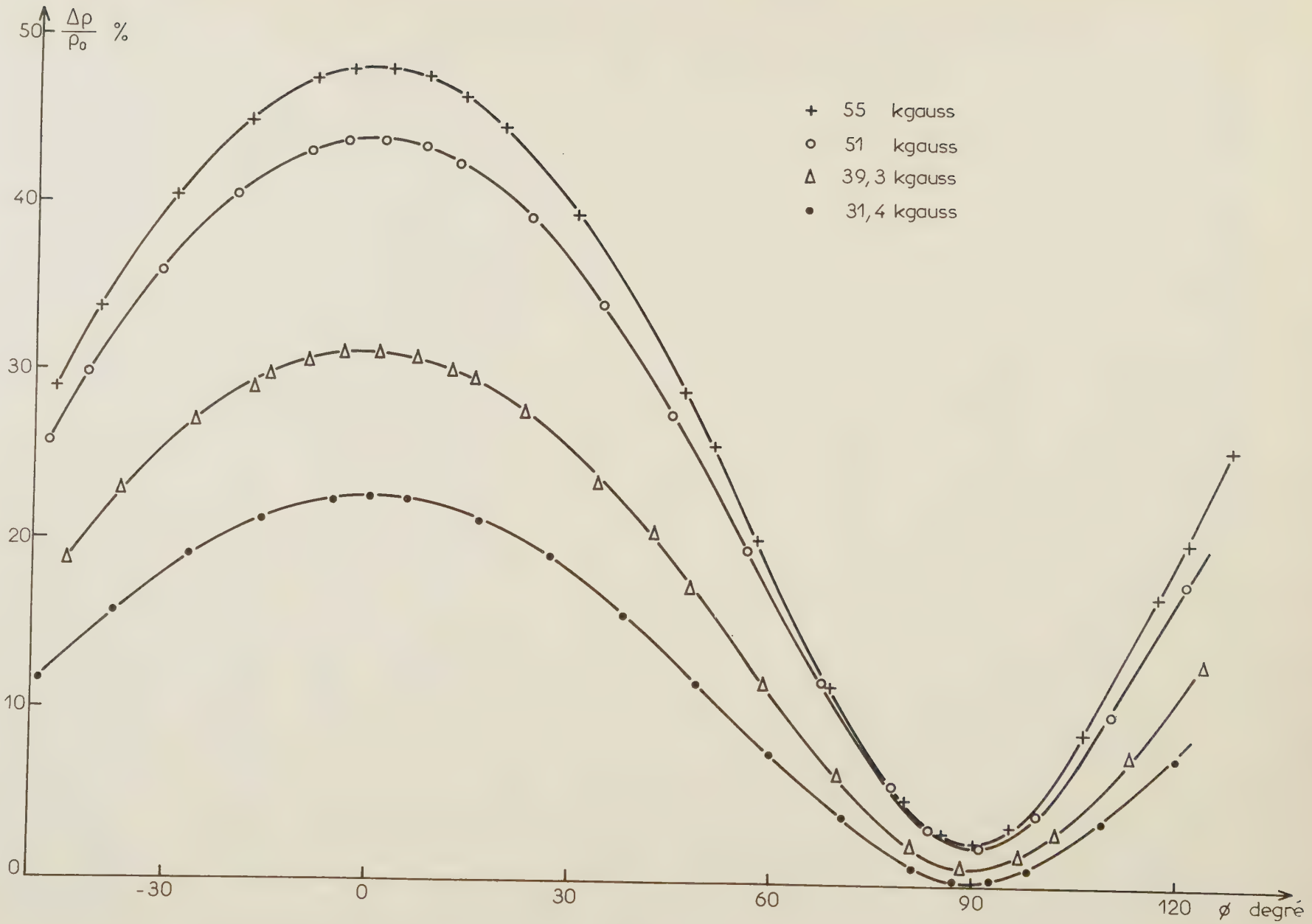

Δρ/ρ₀ %
50
40
30
20
10
0
-30
0
30
60
90
120
ø degré
+ 55 kgauss
o 51 kgauss
Δ 39,3 kgauss
• 31,4 kgauss

Fig. 16

B = 55 KG		B = 51 KG		B = 39,3 KG		B = 31,4 KG	
Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %
- 40,50	33,76	- 48,0	25,84				
- 29,50	40,40	- 42,5	29,87	- 45,0	18,77	- 49,00	11,72
- 18,60	44,94	- 31,5	36,01	- 37,2	22,98	- 38,10	15,66
- 8,70	47,50	- 20,5	40,52	- 26,2	27,12	- 27,10	19,17
- 3,2	48,09	- 9,5	43,20	- 17,5	29,11	- 16,20	21,23
2,5	48,09	- 4,0	43,83	- 15,2	29,84	- 5,5	22,44
8,00	47,73	1,5	43,87	- 9,60	30,73	0,00	22,61
13,50	46,51	7,5	43,53	- 4,30	31,13	5,5	22,44
19,50	44,70	12,7	42,55	1,00	31,21	16,20	21,23
30,50	39,59	23,7	39,34	6,70	30,85	27,10	19,17
47,00	29,10	34,5	34,15	12,0	30,77	38,10	15,66
58,00	20,24	45,5	27,58	15,30	29,71	49,00	11,72
68,90	11,63	56,6	19,63	23,00	27,75	59,90	7,64
79,80	4,91	67,5	11,89	34,00	23,77	70,80	3,27
85,50	3,10	78,0	5,93	42,50	20,58	81,70	1,01
90,30	2,56	83,5	3,29	48,00	17,33	87,20	0,42
95,50	3,49	91	2,35	59,00	11,71	92,8	0,42
106,40	8,96	99,5	4,22	70,00	6,37	98,3	1,01
117,50	17,10	110,5	10,10	81,00	2,38	109,2	3,87
128,50	25,82	121,4	17,81	88,5	1,12	120,1	7,64
				97	1,75		
				102,5	3,19		
				113,3	7,65		
				124,3	13,18		

TABLEAU 6

Figures de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ à 4,3°K à inductions magnétiques fortes.

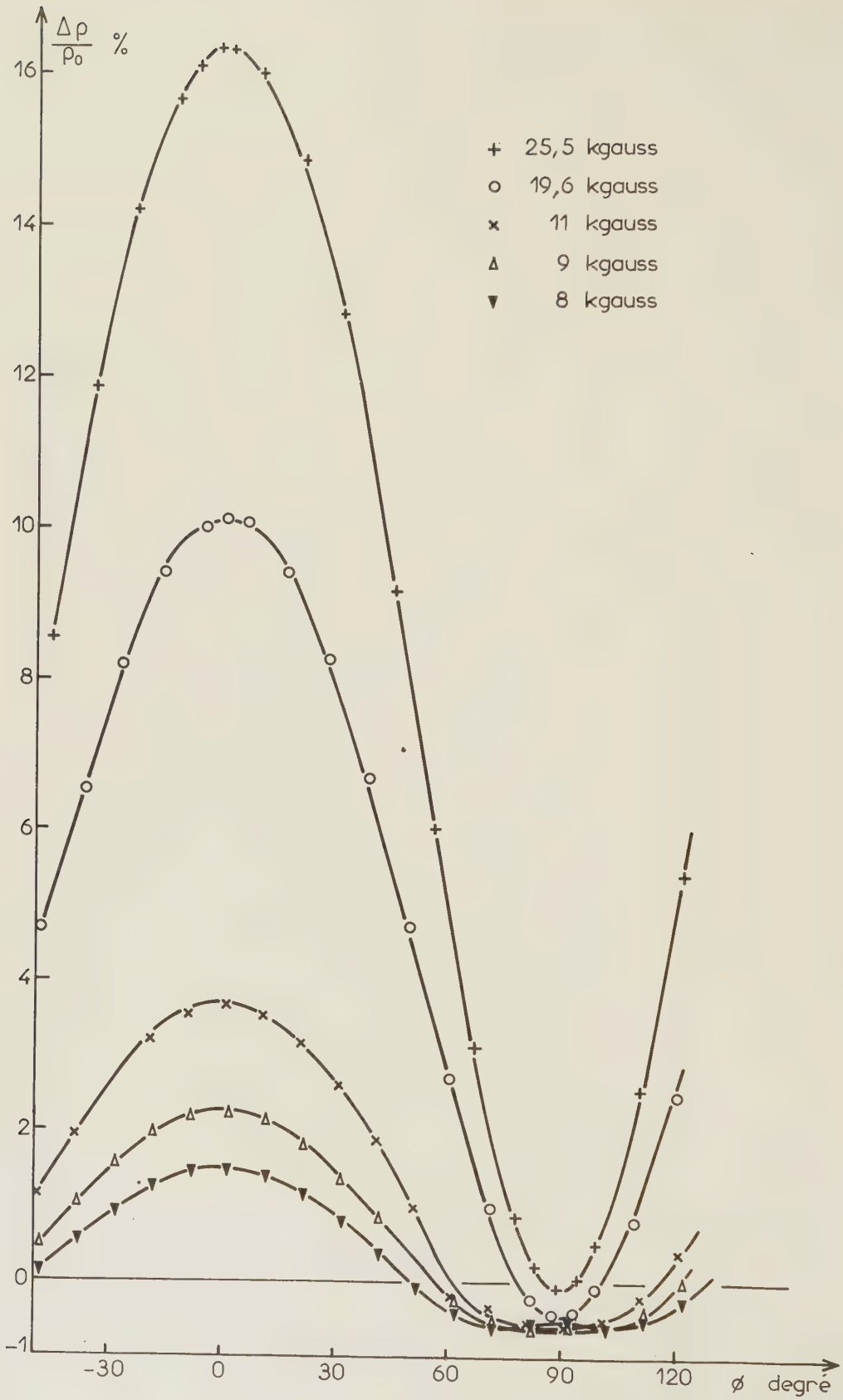

Δρ/ρ₀ %
16
14
12
10
8
6
4
2
0
-1
-30
0
30
60
90
120
ø degre
+ 25,5 kgauss
o 19,6 kgauss
× 11 kgauss
Δ 9 kgauss
▼ 8 kgauss

Fig. 17

B = 25,5 KG		B = 19,6 KG		B = 11 KG		B=9 KG		B = 8 KG
Ø degré	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø degré	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø degré	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø degré	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %
- 47,45	8,54	- 48,54	4,71	- 39	1,95	- 38	1,06	0,56
- 34,36	11,86	- 37,63	6,56	- 29	2,66	- 28	1,57	0,95
- 23,45	14,18	- 26,72	8,19	- 19	3,19	- 18	1,96	1,26
- 12,54	15,64	- 15,81	9,40	- 9	3,55	- 8	2,18	1,44
- 7,09	16,09	- 4,90	10,00	1	3,66	2	2,21	1,49
1,63	16,32	0,54	10,09	11	3,53	12	2,12	1,37
3,81	16,29	6,00	10,05	21	3,16	22	1,82	1,16
9,27	16,03	16,90	9,41	31	2,61	32	1,37	0,80
20,18	14,85	27,81	8,26	41	1,88	42	0,83	0,38
31,09	12,83	38,72	6,68	51	0,99	52	0,26	- 0,07
45,27	9,11	49,63	4,70	61	-0,22	62	-0,22	- 0,42
56,18	6,01	60,54	2,44	71	-0,32	72	-0,53	- 0,58
67,09	3,09	71,50	0,80	81	-0,54	82	-0,58	- 0,57
78,00	0,87	82,36	-0,23	91	-0,60	92	-0,58	- 0,54
83,45	0,23	87,81	-0,42	101	-0,50	102	-0,54	- 0,55
88,90	-0,07	93,28	-0,39	111	-0,18	112	-0,39	- 0,49
94,37	0,05	98,73	-0,09	121	0,40	122	-0,02	- 0,25
99,82	0,51	109,64	0,97	131	1,15	132	0,51	- 0,24
110,73	2,53	120,55	2,70					
121,63	5,37							

Tableau 7

Figures de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ à 4,3°K à inductions magnétiques moyennes

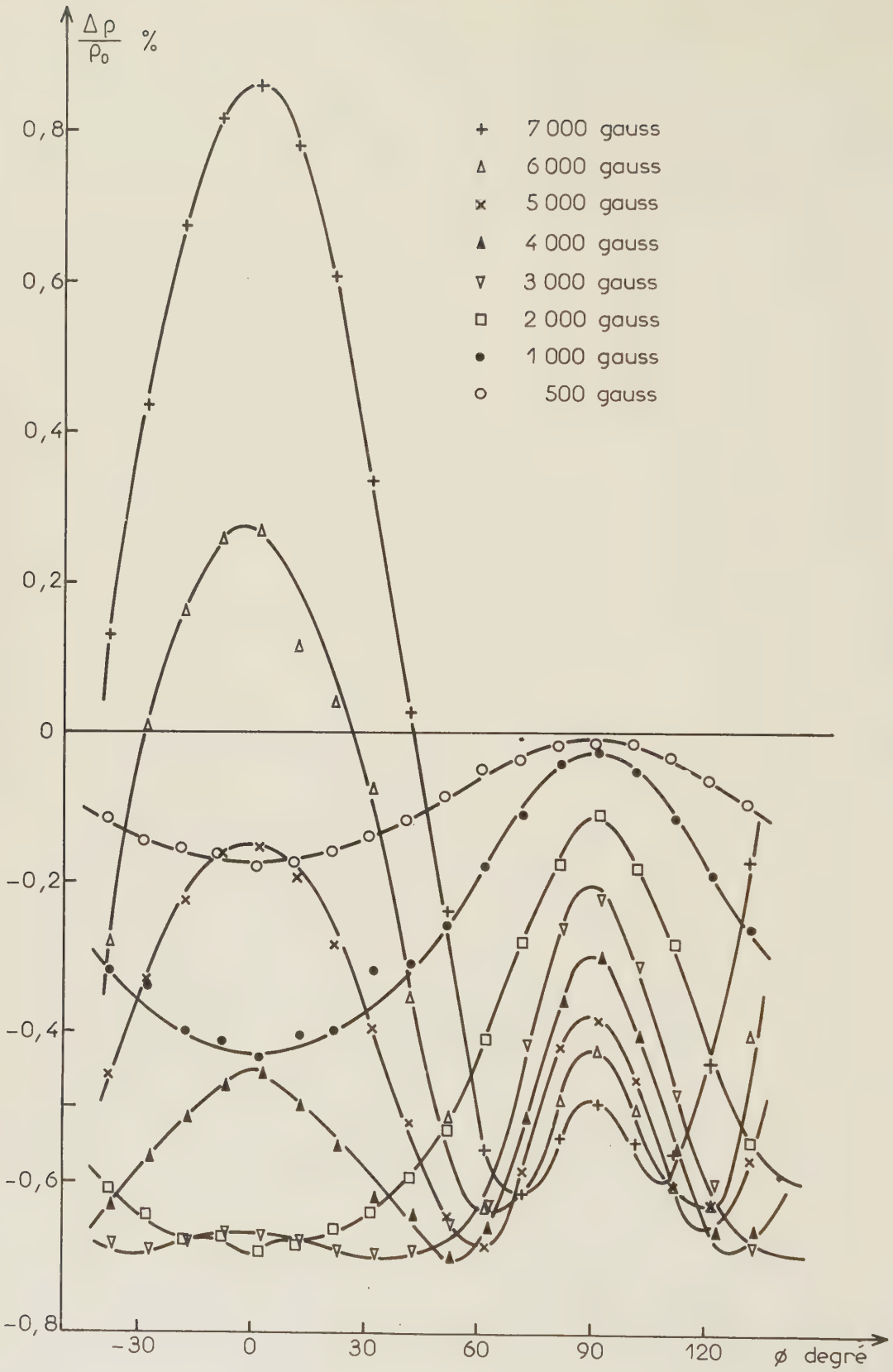

Δρ/ρ₀ %
0,8
0,6
0,4
0,2
0
-0,2
-0,4
-0,6
-0,8
-30
0
30
60
90
120
ø degré
7 000 gauss
6 000 gauss
5 000 gauss
4 000 gauss
3 000 gauss
2 000 gauss
1 000 gauss
500 gauss

Fig. 18

∅(degré)	B = 7000 G	B = 6000 G	B = 5000 G	B = 2000 G	B = 1000 G
- 38	0,131	- 0,280	-0,457	- 0,610	- 0,321
- 28	0,436	0,011	-0,332	- 0,647	- 0,338
- 18	0,673	0,162	-0,226	- 0,678	- 0,399
- 8	0,815	0,257	-0,163	- 0,673	- 0,415
2	0,857	0,268	-0,152	- 0,694	- 0,436
12	0,778	0,115	-0,194	- 0,683	- 0,405
22	0,605	0,042	-0,284	- 0,663	- 0,399
32	0,336	- 0,074	-0,394	- 0,636	- 0,320
42	0,026	- 0,352	-0,521	- 0,594	- 0,310
52	- 0,239	- 0,512	-0,646	- 0,531	- 0,259
62	- 0,557	- 0,636	-0,684	- 0,420	- 0,179
72	- 0,615	- 0,615	-0,584	- 0,278	- 0,110
82	- 0,541	- 0,494	-0,420	- 0,173	- 0,042
92	- 0,494	- 0,426	-0,384	- 0,110	- 0,026
102	- 0,546	- 0,505	-0,463	- 0,178	- 0,052
112	- 0,562	- 0,604	-0,605	- 0,278	- 0,115
122	- 0,441	- 0,631	-0,631	- 0,442	- 0,189
132	- 0,173	- 0,405	-0,568	- 0,547	- 0,262

∅(degré)	B = 4000 G	B = 3000 G
- 37	- 0,631	- 0,683
- 27	- 0,568	- 0,689
- 17	- 0,515	- 0,678
- 7	- 0,473	- 0,667
3	- 0,457	- 0,673
13	- 0,500	- 0,678
23	- 0,552	- 0,689
33	- 0,620	- 0,694
43	- 0,646	- 0,689
53	- 0,689	- 0,652
63	- 0,657	- 0,631
73	- 0,515	- 0,415
83	- 0,358	- 0,262
93	- 0,300	- 0,220
103	- 0,404	- 0,316
113	- 0,562	- 0,483
123	- 0,662	- 0,600
133	- 0,662	- 0,683

∅(degré)	B = 500 G
- 39	- 0,116
- 29	- 0,145
- 19	- 0,173
- 9	- 0,174
1	- 0,179
11	- 0,175
21	- 0,160
31	- 0,140
41	- 0,117
51	- 0,086
61	- 0,059
71	- 0,037
81	- 0,017
91	- 0,015
101	- 0,017
111	- 0,035
121	- 0,065
131	- 0,094

■ Tableau 8

Figure de rotation $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}$(%) → $\frac{\Delta\rho_{\cdot}}{\rho_o}$ (%) à 4,3°K à inductions magnétiques faibles.

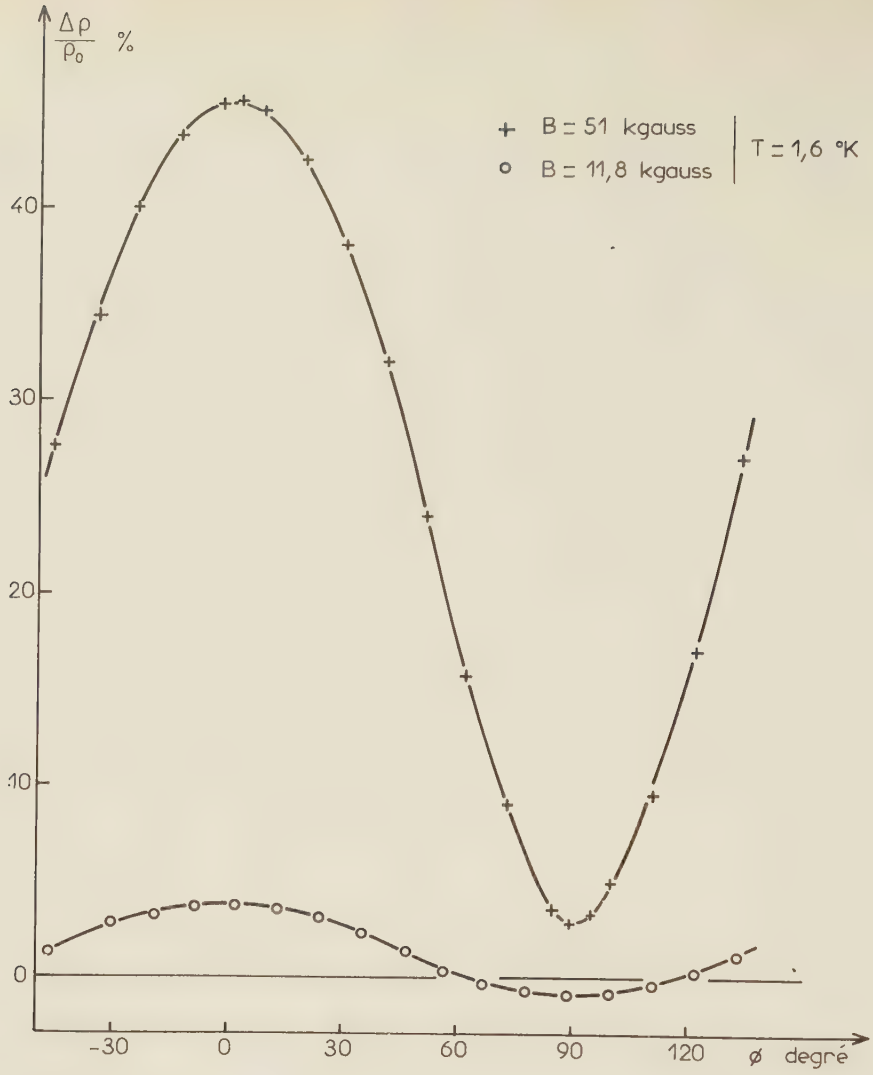

Δρ/ρ₀ %
+ B = 51 kgauss
o B = 11,8 kgauss
T = 1,6 °K
40
30
20
10
0
-30
0
30
60
90
120
ø degré

Fig. 19

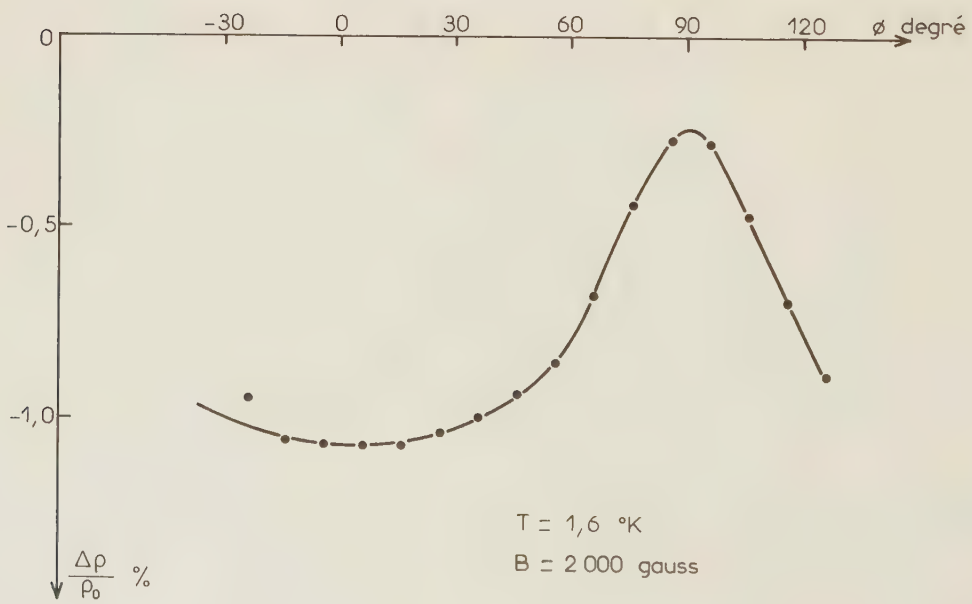

0
-30
0
30
60
90
120
ø degré
-0,5
-1,0
Δρ/ρ₀ %
T = 1,6 °K
B = 2 000 gauss

Fig. 20

B = 51 KG		B = 11,8 KG		B = 2000 Gauss	
Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %	Ø(degré)	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ %
- 46,6	27,59	- 46,6	1,30	- 24	- 0,95
- 34,8	34,61	- 30,3	2,70	- 14	- 1,06
- 25	40,01	- 19,3	3,22	- 4	- 1,07
- 14	43,67	- 8,5	3,64	+ 6	- 1,07
- 3,1	45,31	2,2	3,74	+ 16	- 1,07
2,1	45,39	13	3,52	+ 26	- 1,04
7,8	44,94	24	3,09	+ 36	- 0,99
18,5	42,41	34,9	2,31	+ 46	- 0,93
29,4	38,08	46,8	1,38	+ 56	- 0,85
40,3	31,89	56,7	0,37	+ 66	- 0,68
51,2	24,15	67,5	-0,32	+ 76	- 0,44
62,1	15,72	78,4	- 0,68	+ 86	- 0,27
73,0	8,98	89,3	- 0,87	+ 96	- 0,28
84,9	3,59	100,2	- 0,81	+106	- 0,47
89,5	2,83	111,1	- 0,43	+116	- 0,69
95,0	3,35	122	0,29	+126	- 0,88
100,2	4,94	133	1,15		
111	9,55				
122	17,03				
133,1	27,02				

Tableau 9

Figures de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ à 1,6°K

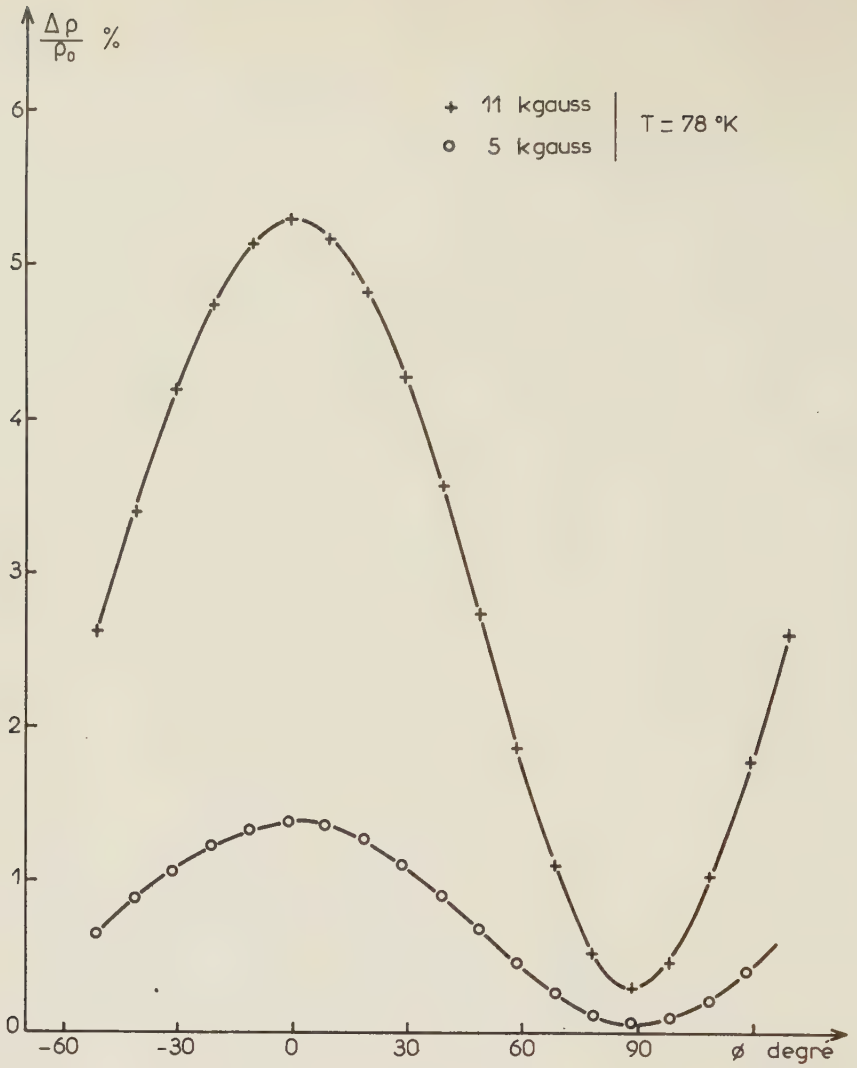

Δρ/ρ₀ %
+ 11 kgauss
o 5 kgauss
T = 78 °K
6
5
4
3
2
1
0
-60
-30
0
30
60
90
ø degré

Fig. 21

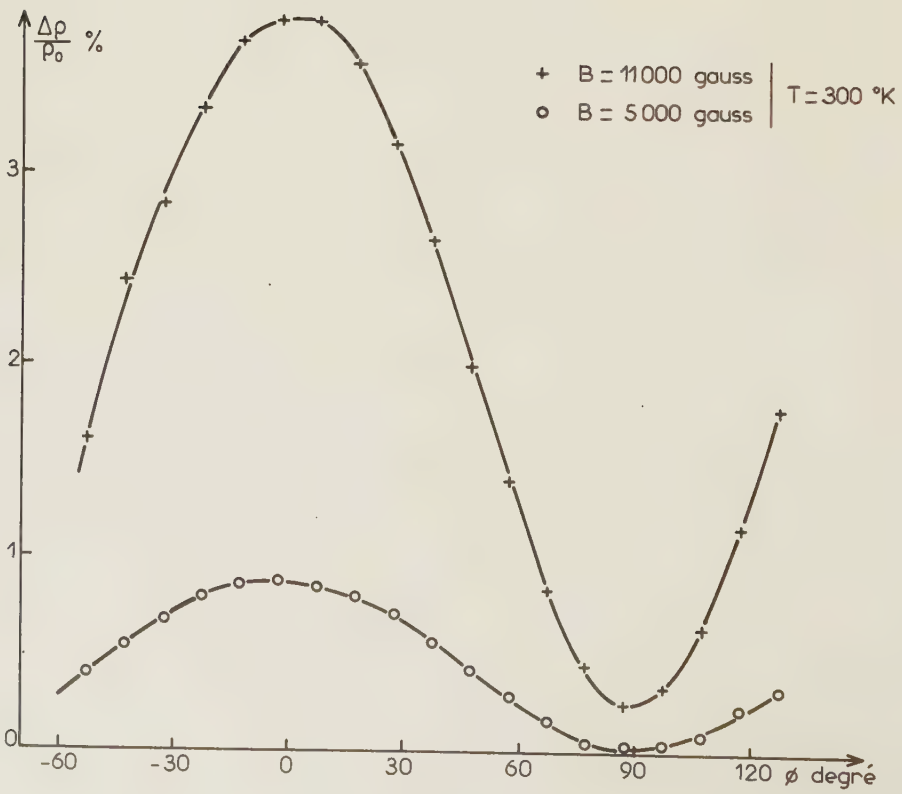

Δρ/ρ₀ %
+ B = 11000 gauss
o B = 5000 gauss
T = 300 °K
3
2
1
0
-60
-30
0
30
60
90
120 ø degré

Fig. 22

T = 78°K

Ø (degré)	B= 11000 G	B = 5000 G
- 51	2,640	0,646
- 41	3,382	0,857
- 31	4,172	1,045
- 21	4,743	1,217
- 11	5,125	1,316
- 1	5,286	1,367
9	5,165	1,339
19	4,811	1,251
29	4,260	1,090
39	3,547	0,898
49	2,729	0,680
59	1,858	0,455
69	1,104	0,258
79	0,523	0,115
89	0,292	0,061
99	0,469	0,101
109	1,015	0,217
119	1,749	0,401
129	2,572	----

T = 300°K

Ø (degré)	B=11000G	B=5000 G
- 52,5	1,587	0,396
- 42,5	2,226	0,538
- 32,5	2,830	0,675
- 22,5	3,327	0,793
- 12,5	3,681	0,852
- 2,5	3,788	0,876
7,5	3,776	0,840
17,5	3,575	0,793
27,5	3,149	0,710
37,5	2,652	0,562
47,5	2,013	0,420
57,5	1,397	0,296
67,5	0,841	0,160
77,5	0,450	0,048
87,5	0,248	0,30
97,5	0,355	0,041
107,5	0,651	0,089
117,5	0,231	1,172
127,5	0,331	1,775

Tableau 10

Figures de rotation $\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}$ (%) → $\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ (%) à 78 et 300°K

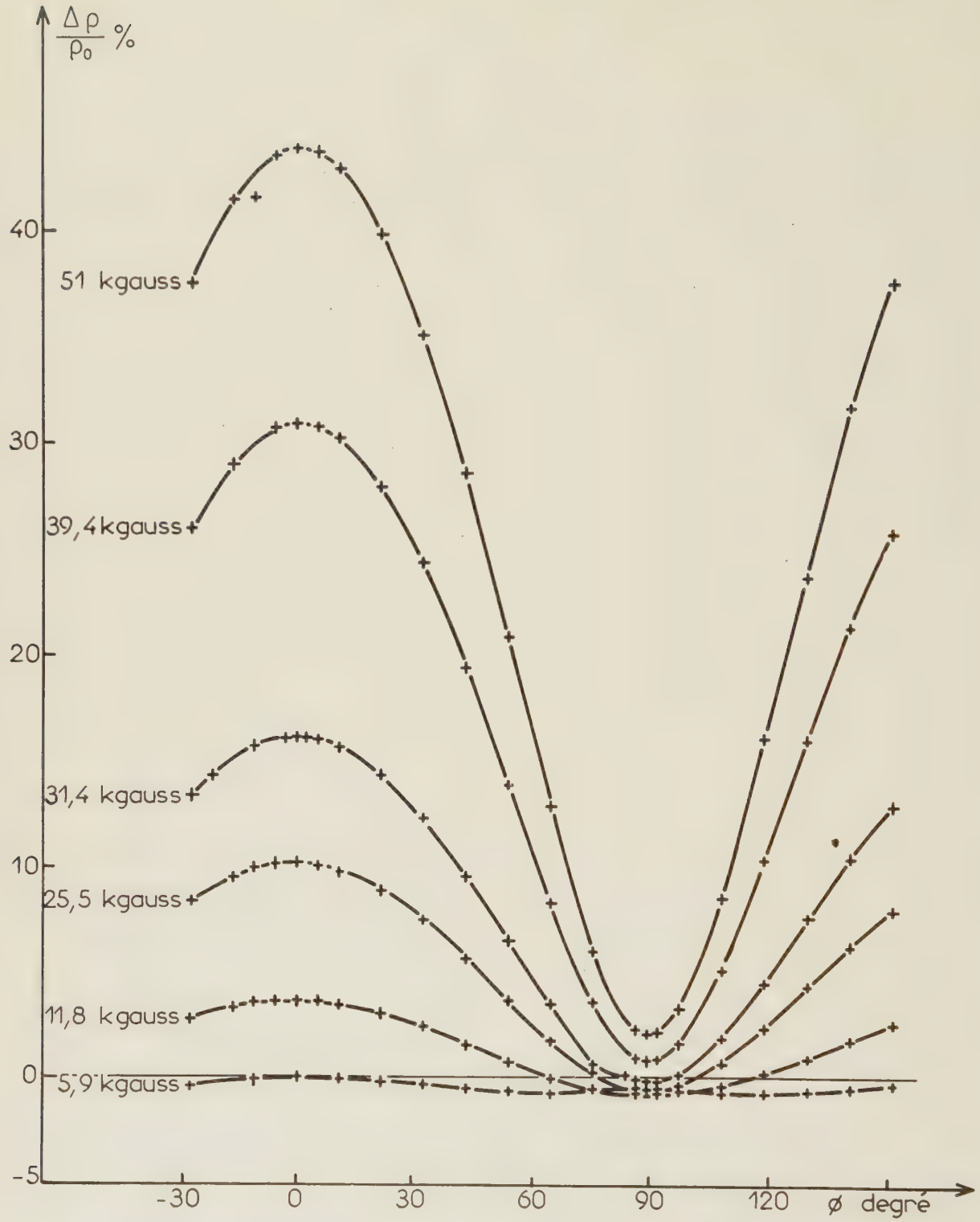

Δρ/ρ₀ %
40
30
20
10
0
-5
51 kgauss
39,4 kgauss
31,4 kgauss
25,5 kgauss
11,8 kgauss
5,9 kgauss
-30
0
30
60
90
120
ø degré

Fig. 23

Ø degré	B =51 KG	B=39,3 KG	B =31,4 KG	B =25,5 KG	B =11,8 KG	B =5,9 KG
- 27,5	37,50	25,97	13,28	8,35	2,78	- 0,192
- 22,4			14,28			
- 16,7	41,46	29,05		9,49	3,31	
- 11,2			15,68	9,88		- 0,006
- 5,9	43,52	30,60		10,17	3,60	
- 3			16,05			
- 0,5	43,79	30,84	16,13	10,20	3,64	0,066
2,1			16,09			
5	43,57	30,69	16,01	10,05	3,63	
10,2	42,85	30,19	15,64	9,77	3,51	-0,012
21	39,87	27,89	14,33	8,92	3,06	-0,107
31,9	35,05	24,30	12,30	7,48	2,45	-0,266
42,8	28,46	19,42	9,55	5,68	1,63	-0,455
33,5	20,83	13,87	6,52	3,67	0,75	-0,597
64,4	12,85	8,26	3,52	1,81	0,00	-0,648
75,3	6,03	3,58	0,71	0,35	-0,46	-0,551
86,2	2,30	1,04	-0,06	- 0,42	-0,67	-0,459
89,0	2,15	0,96	-0,14	- 0,49		
91,5	2,22	0,96	-0,11	- 0,47	-0,65	
97,0	3,30	1,69	0,23	- 0,130	-0,61	-0,512
108	8,47	5,13	1,94	0,73	-0,38	-0,648
118,7	16,02	10,27	4,51	2,38	0,20	-0,690
129,5	23,52	15,90	7,55	4,31	0,94	-0,597
140,4	31,44	21,18	10,42	6,23	1,82	-0,468
151,3	37,25	25,56	12,80	7,88	2,56	-0,30

TABLEAU 11

Figures de Rotation $\frac{\Delta\rho_\perp \%}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_\perp' \%}{\rho_o}$ à 4,3°K

b) Mesures aux autres températures

- T = 1,6°K ; B(KG) = 51 - 11,8 - 2((tableau (9) fig(19) et fig.(20))

Ces courbes sont semblables aux courbes réalisées à 4,3°K. Comme l'on pouvait s'y attendre, les magnétorésistances longitudinale et transverse ont cependant des valeurs plus importantes à 1,6°K qu'à 4,3°K pour B = 51 KG.

- T = 78°K et T = 300°K (tableau (10) fig. (21) et fig. (22))

Les figures de rotations à 11 000 Gauss et à 5 000 Gauss présentent le même aspect qu'à 4,3°K à inductions magnétiques plus élevées.

B - Figure de rotation $\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$ à 4,3°K

SPAIN, UBBELHODE et YOUNG (32) comme nous l'avons vu au paragraphe(I.3.2.d) ont trouvé sur un pyrographite approximativement les mêmes résultats entre les deux types de figures de rotation.

$$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}$$

et $$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} \rightarrow \frac{\Delta\rho_{\perp'}}{\rho_o}$$

Nous l'avons vérifié à 4,3°K pour des inductions magnétiques B(KG) = 51 ; 39,3 ; 31,4 ; 25,5 ; 11,8 et 5,9.(Tableau (11) et fig.(23)).

- 3ème Partie -

EXPLOITATION DES RESULTATS ET INTERPRETATION

Dans cette dernière partie nous allons interpréter les résultats expérimentaux obtenus sur cet échantillon de pyrocarbone en nous appuyant sur les théories et modèles développées dans la première partie. Tout d'abord nous allons considérer la magnétorésistance positive qui a priori est plus simple à appréhender. Ensuite en supposant qu'une loi d'additivité permet de séparer en deux composantes la magnétorésistance observée nous essayerons de rendre compte des figures de rotation et de la magnétorésistance négative mesurée à basse température.

III.1 RELATION ENTRE LES GRANDEURS THEORIQUES ET EXPERIMENTALES DE LA MAGNETORESISTANCE POSITIVE

Au chapitre I.1 nous avons examiné la théorie phénoménologique des propriétés galvanomagnétiques relatives à un monocristal de graphite ; les modèles de la physique du solide imaginés pour appréhender cette théorie montrent que la magnétorésistance observée ne peut être qu'une grandeur positive ou nulle.

Ensuite au chapitre II.3 nous avons choisi un échantillon de pyrocarbone qui présentait expérimentalement une magnétorésistance tantôt positive tantôt négative suivant les conditions expérimentales choisies. Les études antérieures ainsi que nous l'avons rappelé dans la partie bibliographique, ont montré que l'existence d'une magnétorésistance négative est liée

à l'absence de tripériodicité du réseau cristallin ; ainsi l'échantillon étudié est un solide possédant une structure cristalline imparfaite. Nous savons en effet qu'un pyrocarbone est constitué de cristallites graphitiques de taille moyenne définie, empilés les uns sur les autres d'une manière imparfaite et contenant encore un grand nombre de défauts de réseau principalement aux bords des cristallites.

Nous nous trouvons par conséquent en face du problème suivant : d'une part nous connaissons les équations théoriques applicables à un monocristal dont les coefficients sont définis par rapport à ses axes cristallins, d'autre part des résultats expérimentaux sont déterminés par rapport à un référentiel macroscopique lié à la plaquette de pyrocarbone.

Si l'on veut remonter aux grandeurs fondamentales il faut donc changer de référentiel c'est-à-dire passer de celui de la plaquette à celui défini pour un cristallite que l'on assimile à un monocristal (48).

Ce calcul théorique, concernant la magnétorésistance qui est un tenseur du quatrième ordre a été effectué (49). Il conduit à des expressions complexes qu'il a été impossible d'utiliser pour la raison suivante. Du point de vue expérimental nous ne pouvons déterminer que trois termes, les deux composantes transverses et la composante longitudinale existant dans les plans graphitiques, or théoriquement nous avons six inconnues, il est donc nécessaire de faire des approximations qui sont difficiles à évaluer (même dans le monocristal de graphite tous les termes du tenseur de magnétorésistance ne sont pas connus). En outre, lorsqu'on effectue ce changement de référentiel il faut supposer que le cristallite graphitique est un monocristal or celui-ci est de dimensions limitées et contient des défauts de réseau ; c'est par l'absence d'un ordre à grande distance qu'il contribue à l'existence d'une composante négative. Pour ces deux raisons, il nous est apparu plus raisonnable d'effectuer l'interprétation des résultats expérimentaux en raisonnant sur les grandeurs expérimentales définies par rapport à la plaquette ($\frac{\Delta\rho_{\perp}^{+}}{\rho_o}$ et $\frac{\Delta\rho_{//}^{+}}{\rho_o}$).

Dans la seconde partie de l'étude expérimentale nous avons effectué des études en fonction de l'angle $\emptyset$ entre l'axe C de la plaquette et l'induction magnétique B. Or théoriquement, nous avons défini la relation suivante (chap. I, équation 27).

$$E_1 = \rho^o_{11} \left|\vec{J}\right| + (A_{11} \sin^2 \emptyset + A_{13} \cos^2 \emptyset) \left|\vec{B}\right|^2 \left|\vec{J}\right|$$

que l'on peut écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\rho_B - \rho_o}{\rho_o} = \frac{\frac{E_1}{|\vec{J}|} - \rho_{11}}{\rho^o_{11}} = \left(\frac{A_{11} \left|\vec{B}\right|^2}{\rho^o_{11}}\right) \sin^2 \emptyset + \left(\frac{A_{13} \left|\vec{B}\right|^2}{\rho^o_{11}}\right) \cos^2 \emptyset \qquad (44)$$

Ne pouvant pas introduire les résultats expérimentaux dans cette équation, par analogie nous avons posé :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_o} = \frac{\rho_B - \rho_o}{\rho_o} = A \cos^m \emptyset + B \sin^m \emptyset \qquad (45)$$

$$\text{avec } A = \frac{\Delta\rho^+_\perp}{\rho_o}$$

$$B = \frac{\Delta\rho^+_{//}}{\rho_o}$$

$$m \# 2$$

C'est la relation que nous emploierons ultérieurement.

III-2 ESSAI D'INTERPRETATION DE LA MAGNETORESISTANCE TRANSVERSE POSITIVE

Il est indispensable d'examiner le comportement de la magnétorésistance positive (dans le domaine de champ magnétique ou de température où elle est seule ou tout au moins prépondérante), avant d'essayer d'interpréter la magnétorésistance négative.

Pour tenter d'interpréter les résultats obtenus on est obligé de se référer à la théorie classique telle qu'elle a été résumée dans le premier chapitre. (cf paragraphe I.1.2). Nous avons vu en effet que la conductivité électrique, la magnétorésistance et le coefficient de Hall pouvaient s'exprimer d'une manière simple de forme "standard" pour lesquelles l'approximation dite "des masses effectives" est valable. Examinons sous quelles conditions il est possible d'utiliser ces expressions (équations 32, 34, 35, 36).

Les bandes d'énergie électronique du monocristal de graphite sont de formes très particulières, elles ne correspondent pas au cas simple envisagé. Afin d'interpréter les propriétés galvanomagnétiques observées, Mc CLURE (50) a développé une théorie beaucoup plus générale valable quelle que soit la forme des bandes d'énergie, le nombre de porteurs de charge et la valeur du champ magnétique. Cependant SOULE (31) en effectuant l'étude expérimentale sur plusieurs monocristaux de graphite a pu fournir une interprétation satisfaisante des résultats obtenus en utilisant les expressions classiques habituelles. On suppose généralement que si le modèle simple est une approximation valable dans le cas d'un monocristal de graphite il le sera également dans le cas des pyrocarbones. Il faut alors remarquer que ces pyrocarbones ne sont pas des solides complètement cristallins et que lorsqu'on utilise comme KLEIN (51) ce modèle standard de bandes d'énergie on effectue implicitement une hypothèse supplémentaire car la forme réelle des bandes d'énergie n'est pas exactement connue (52).

Nous allons cependant utiliser cette théorie pour examiner les résultats obtenus sur l'échantillon de pyrocarbone (HTT = 2560°C) étudié. La validité de l'interprétation ainsi proposée sera analysée à la fin de ce paragraphe en fonction des résultats obtenus.

III.2.1 Calcul de la mobilité moyenne des porteurs de charge libres

Quoique la forme des bandes d'énergie des électrons π ne soit pas connue exactement on peut affirmer que, dans le cas d'un échantillon de pyrocarbone presque totalement graphité, nous sommes en présence d'une bande de conduction dont la partie inférieure est au contact du sommet de la bande de valence. Le niveau de Fermi à 0°K se trouve situé dans cette bande de valence, car il existe un déficit électronique correspondant aux défauts de réseau de la structure graphitique (53). On se trouve, aux plus hautes températures tout au moins, en présence de deux types de porteurs : les trous de la bande de valence et les électrons de la bande de conduction. Les expressions théoriques classiques (cf chapitre I.1.2) concernant la conductivité, la magnétorésistance transverse et l'effet Hall forment un ensemble de trois équations à quatre inconnues : nombre d'électrons et de trous (n_e et n_t) et mobilités respectives (μ_e et μ_t). Pour tenter d'interpréter les résultats obtenus nous avons considéré uniquement la résistivité et l'effet Hall en examinant tout d'abord le cas limite lorsque la température de mesure tend vers le zéro absolu. Ensuite nous avons examiné si les résultats obtenus étaient en accord avec les données expérimentales concernant la magnétorésistance transverse positive.

- Etude au voisinage du zéro absolu

Lorsque la température tend vers 0°K seuls les trous de la bande de valence demeurent comme porteurs de charge libres car il n'y a plus d'électrons thermiquement excités dans la bande de conduction.

Dans ce cas la théorie prévoit que (cf paragraphe I.1.2)

$$\rho_o^{-1} = \sigma_o = n_o \mu_o e$$

$$R_{H_o} = \frac{1}{n_o e}$$

$$\text{et } \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_o} \right) \equiv 0$$

On peut donc à partir de ρ_o et R_{H_o} calculer le nombre de trous n_o dans la bande de valence et leur mobilité μ_o.

Par extrapolation des variations thermiques de ces deux grandeurs (cf. figure 11) on trouve

$$\rho_o = 5.10^{-6}\ \Omega\ m = 5.10^{-4}\ \Omega\ cm$$

$$R_{H_o} = 0{,}26\ 10^{-6}\ m^3.\ Cb^{-1} = 0{,}26\ \ cm^3.\ Cb^{-1}$$

d'où $$n_o = \frac{1}{eR_{H_o}} = 2{,}40.10^{19}\ \text{trous par } cm^3$$

$$\mu_o = R_{H_o} \cdot \rho_o^{-1} = 5{,}2\ \ 10^{+2}\ \ cm^2/V.\,sec$$

soit en uem CGS $\left(\mu_o \left(cm^2/V\ sec \times 10^{-8}\right) = \mu_o\left(\text{uem CGS}\right)\right)$

$$\mu_o = 5{,}210 \text{ uem CGS}$$

nous pouvons calculer l'induction critique Bc tel que $B_c.\mu = 1$

$$B_c = 192 \text{ Kgauss}$$

et par conséquent conclure que lors de nos expériences nous sommes vraisemblablement toujours dans le domaine des "champs faibles", ainsi que nous l'avons supposé en développant la théorie phénoménologique des propriétés de transport.

- Etude aux différentes températures

A toutes les températures, même aux plus basses (T = 1,6°K), nous sommes en présence de deux types de porteurs car nous observons toujours une magnétorésistance transverse positive ; nous ne pouvons pas par conséquent négliger l'existence, même en faible nombre, d'électrons de conduction.

Pour effectuer une interprétation même semi-quantitative, il faut introduire une hypothèse supplémentaire. Nous avons posé que les mobilités des trous et des électrons étaient identiques quelle que soit la température ; en effet SOULE (31) a montré que les mobilités des trous et des électrons étaient assez voisines dans un monocristal de graphite et ce résultat a été

récemment confirmé par SPAIN (54) sur plusieurs types de graphites ($0{,}9 \leq \frac{\mu t}{u_e} \equiv b \leqslant 1{,}1$). Nous avons supposé que :

$$\mu_e = \mu_t = \mu \quad \text{et} \quad b = \frac{\mu_t}{\mu_e} = 1$$

Les expressions classiques s'écrivent alors dans l'approximation des"champs faibles".

$$\sigma = e.\mu(n_t + n_e) \qquad (46)$$

$$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} = \frac{4a}{(1+a)^2}(\mu B)^2 = \frac{4n_e\, n_t}{(n_e + n_t)^2}(\mu B)^2 \qquad (47)$$

$$R_{H_o} = \frac{1}{en_t}\,\frac{1-a}{(1+a)^2} = \frac{1}{e}\,\frac{n_t - n_e}{(n_t + n_e)^2} \qquad (48)$$

Si on écrit en outre que l'excédent de trous déterminé à 0°K est une grandeur constante quelque soit la température de mesure,

soit $n_t - n_e = n_o$;

on obtient une relation simple entre n_o et R_{H_o} qui permet de calculer la mobilité moyenne desporteurs à une température donnée.

$$\mu^2 = \frac{\sigma^2 R_{H_o}}{e\, n_o} \qquad (49)$$

Connaissant n_o et R_{H_o} on peut donc calculer la mobilité moyenne aux différentes températures et l'induction critique associée à la valeur de la mobilité moyenne (tableau 12).

On constate une faible diminution de la mobilité moyenne des porteurs de charge lorsque la température s'élève jusque vers 78°K, cependant la valeur obtenue à température ordinaire semble trop élevée. Si l'on compare avec les résultats habituels on devrait s'attendre à une variation de la mobilité inversement proportionnelle à la température entre 78° et 300°K et constante aux températures voisines de celle de l'hélium liquide lorsque la mobilité des porteurs est limitée par la dimension des cristallites graphitiques (15).

Dans tous les cas la valeur de l'induction critique demeure élevée, les mesures de magnétorésistance ont été effectuées dans l'approximation des "champs faibles" ; par conséquent la magnétorésistance transverse positive doit être proportionnelle au carré de l'induction magnétique.

Remarque :

Calcul du nombre de porteurs

A partir des deux relations suivantes on peut calculer le nombre d'électrons n_e et le nombre de trous n_t :

$$n_e - n_t = n_o$$

$$n_e + n_t = (e\mu\rho)^{-1}$$

Les valeurs obtenues à partir des résultats expérimentaux et de la mobilité moyenne calculée sont présentées dans le tableau (12).

T(°K)	0	43	78	300
$\mu \times 10^6$ (uem CGS)	5,2	5,0	3,8	4,2
B_c (k gauss)	192	200	263	260
$n_t \times 10$ (cm^3)	2,40	2,465	3,35	4,56
$n_e \times 10^{-19}$	0	0,065	0,95	2,16
$a = \frac{n_e}{n_t}$	0	0,026	0,283	0,475

TABLEAU 12

III.2.2 Evaluation "a priori" de la magnétorésistance transverse positive

Connaissant la mobilité moyenne μ des porteurs et leur rapport $a = \frac{n_e}{n_t}$ il est possible d'évaluer la magnétorésistance transverse positive. En effet, nous avons vu que lorsqu'on est en présence de deux types de porteurs de charges cette grandeur est égale à (cf équation 36)

$$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} = \frac{a\left(\frac{b+1}{b+a}\right)^2 \mu_e \mu_t B^2}{1 + \left(\frac{a-1}{a+b}\right)(\mu_t B)^2}$$

lorsque $b = 1$

et $\mu B \ll 1$

$$\frac{\Delta\rho_\perp}{\rho_o} = \frac{4a}{(1+a)^2}(\mu B)^2 \qquad (50)$$

On peut donc calculer quelle devrait être la magnétorésistance transverse positive associée aux mesures de résistivité et d'effet Hall dans le cadre de cette théorie.

T°K	$\frac{\Delta\rho^+}{\rho_o}$ (B=10 kgauss) x 10^2	$\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ exp x 10^2
4,3	0,024	2,90
78	0,085	3,90
300	0,154	3,30

TABLEAU 13

Les résultats obtenus (tableau 13) ne sont pas en bon accord avec les résultats expérimentaux (fig.14) qui, rappelons le, peuvent être à 4,3°K seulement la résultante d'une composante positive prépondérante et d'une composante négative beaucoup plus faible. En définitive cette interprétation n'apparait pas cohérente puisqu'il n'est pas possible d'interpréter correc-

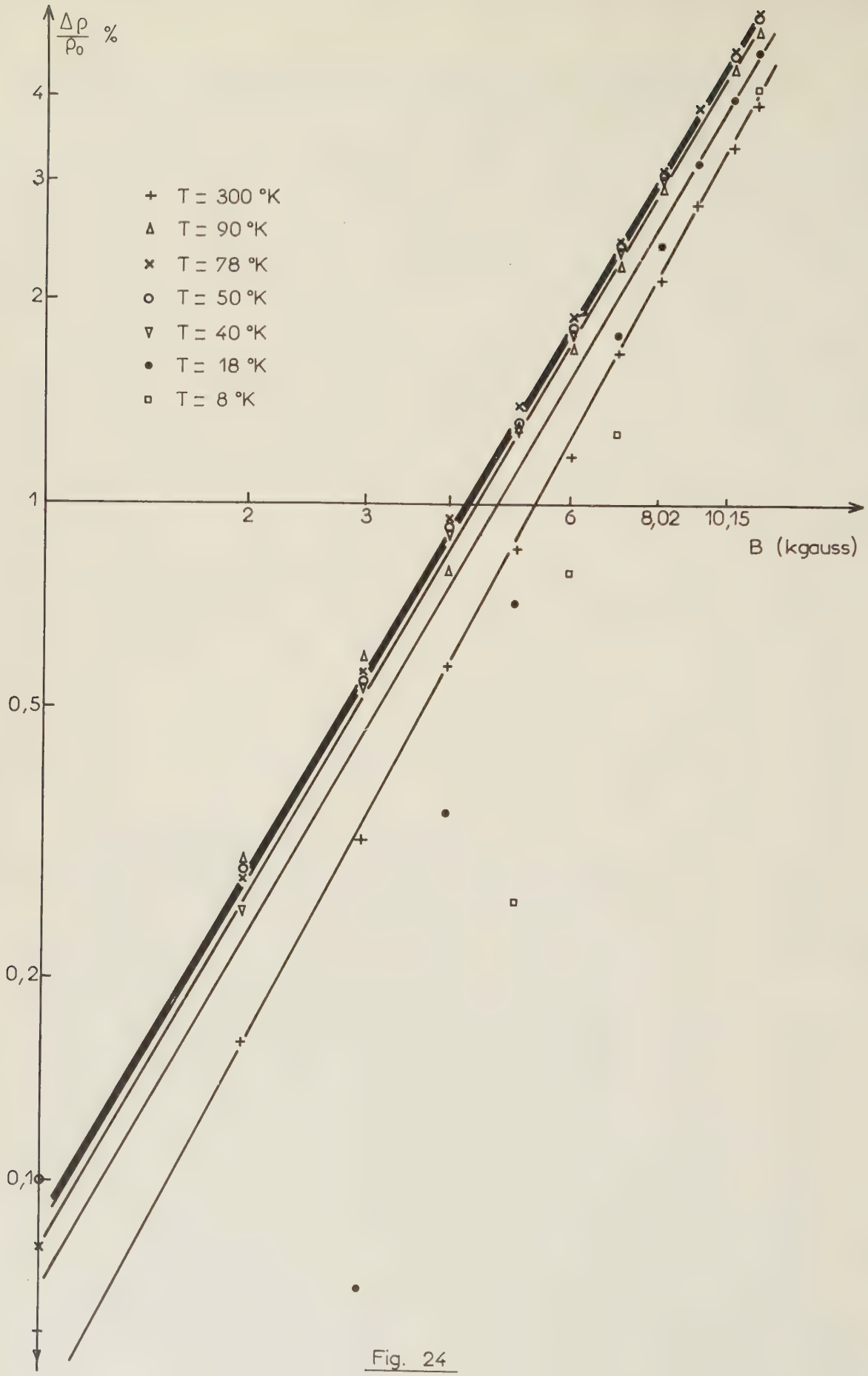

Δρ/ρ₀ %
4
3
2
1
0,5
0,2
0,1
+ T = 300 °K
Δ T = 90 °K
× T = 78 °K
o T = 50 °K
▽ T = 40 °K
• T = 18 °K
▫ T = 8 °K
2
3
6
8,02
10,15
B (kgauss)

Fig. 24

tement l'ensemble des résultats. Cependant comme nous l'avons déjà dit il est indispensable d'interpréter la composante positive de la magnétorésistance transverse afin d'élucider la nature de la composante négative aux basses températures. Dans ce but, nous allons paramétrer les résultats expérimentaux ce qui nous permettra également de comprendre pourquoi cette tentative d'interprétation n'a pas été concluante.

III.2.3 Paramétrage de la variation de la magnétorésistance transverse positive en fonction de l'induction magnétique

Les résultats expérimentaux sont habituellement analysés à l'aide de l'équation empirique suivante (30) :

$$\frac{\Delta\rho_{\perp}^{+}}{\rho_o} = c\, B^n$$

En utilisant des coordonnées logarithmiques on peut déterminer n dans un domaine restreint de l'induction magnétique et calculer ensuite la valeur de la constante c. Examinons les résultats présentés au chapitre précédent en utilisant cette méthode de paramétrage.

- Etude à induction faible ($B \leq 11$ Kgauss) (fig.24)

Expérimentalement nous avons effectué des mesures de magnétorésistance transverse à inductions faibles seulement pour les températures supérieures à 4,3°K. Excepté à 8°K et à 18°K (voir figure 14) la magnétorésistance positive est prépondérante et nous l'avons analysée sans tenir compte de l'existence possible de la magnétorésistance négative qui cependant apparait au dessous de 3 kgauss à T = 40°K (fig.24) : Le résultat obtenu à 18°K peut être paramétré dans un domaine très restreint de l'induction magnétique, entre 11 et 9 Kgauss car pour les valeurs inférieures de l'induction magnétique il existe une composante négative non négligeable que nous examinerons ultérieurement. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau 14.

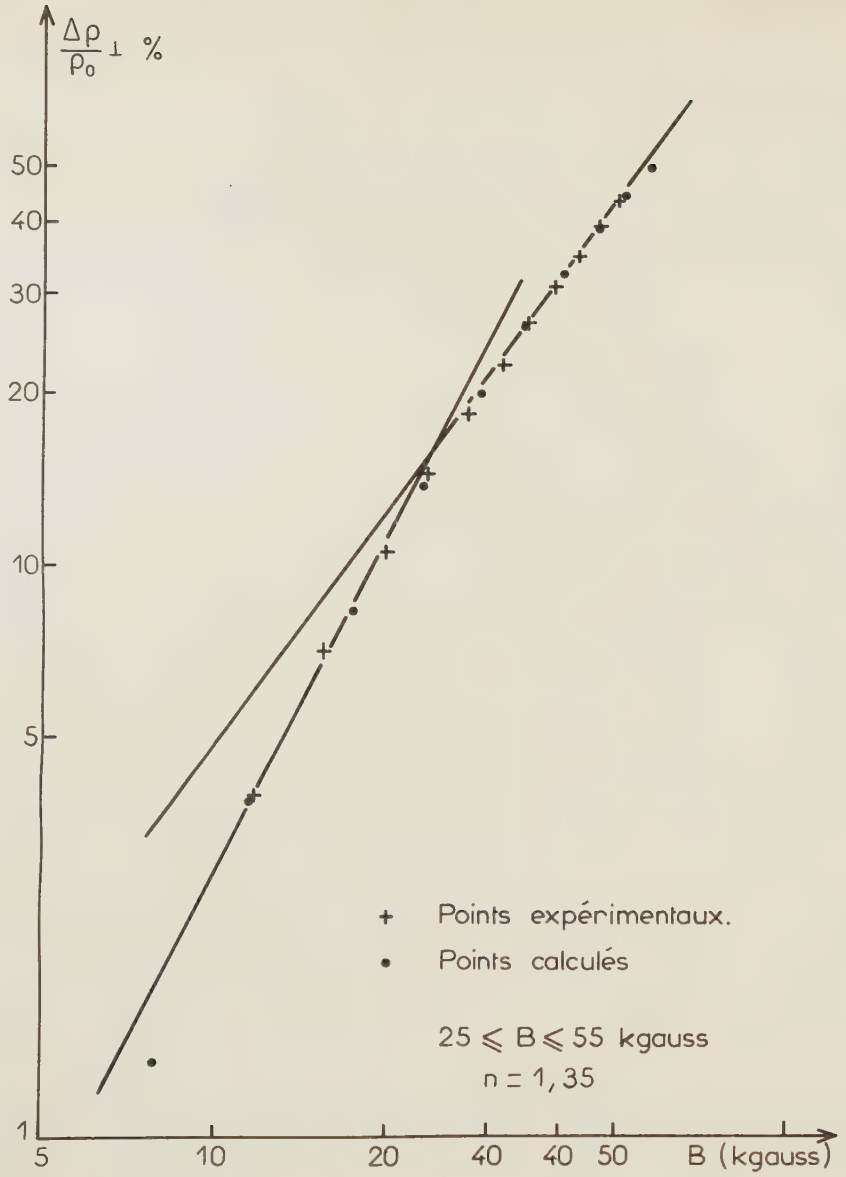


Fig. 25

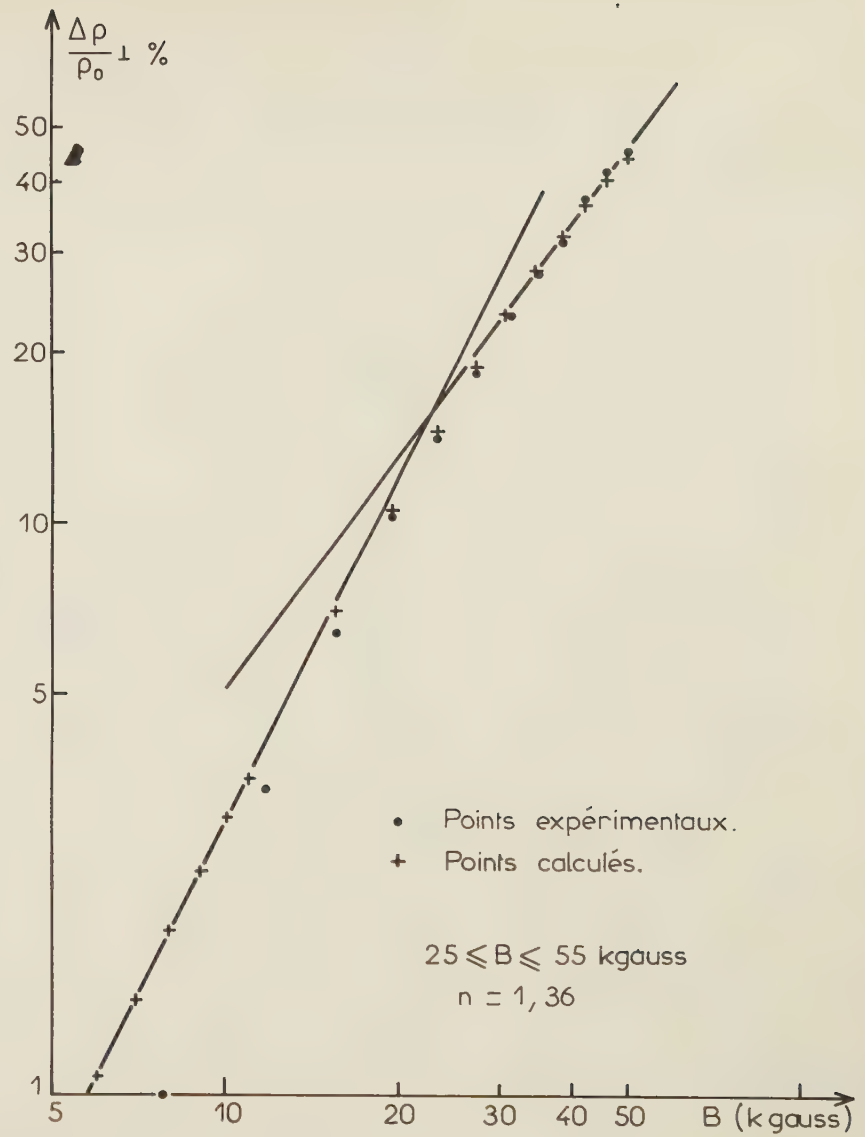


Fig. 26

Figure 25 et 26 : Pour les points calculés on a utilisé l'équation (51)

où Cte = 1

et $\mu = 17{,}5.10^{-6}$ uem CGS

T(°K)	domaine de validité du paramétrage	C x 10^2 (avec B en Kgauss et $\frac{\Delta\rho}{\rho_o}$ en %)	n (précision $\pm$ 0,05)
300	$2 \leqslant B \leqslant 11$ Kgauss	4,37	1,97
90	"	7,85	1,80
78	"	8,71	1,75
50	"	8,51	1,78
40	$3 \leqslant B \leqslant 11$ Kgauss	8,32	1,78
18	$9 \leqslant B \leqslant 11$ Kgauss	6,84	1,78

Tableau 14

Nous remarquons que, excepté à température ordinaire, la magnétorésistance observée n'est pas proportionnelle au carré de l'induction magnétique ainsi que nous l'avions supposé au paragraphe précédent.

- Etude à induction forte (B > 11 Kgauss) (fig.25 et fig.26)

A 4,3° et 1,6°K nous avons observé au dessous de 5 kgauss une magnétorésistance transverse négative qui devient négligeable à induction forte. Nous avons supposé en effet que la composante négative doit prendre une valeur constante à inductions fortes ainsi que le prévoit la théorie de TOYOZAWA (paragraphe I.2.2).

L'analyse de ces résultats en coordonnées logarithmiques (fig.25 et 26) montre que la relation empirique proposée n'est valable qu'entre 20 et 50 kgauss ; dans ce domaine de l'induction magnétique on trouve $n = 1,35 \pm 0,05$. Il apparait donc que la magnétorésistance transverse positive ne peut pas être interprétée dans le cadre de l'approximation "des champs faibles" ainsi que nous l'avions suggéré au paragraphe précédent. L'interprétation proposée, basée sur un modèle à deux bandes d'énergie de forme standard ne semble pas valable du point de vue quantitatif ; cependant, nous l'avons utilisé afin d'interpréter le comportement en présence de champ magnétique élevé de la magnétorésistance transverse observée à 4,3°K et 1,7°K. Si nous reprenons l'équation générale (36) de la magnétorésistance dans l'approximation envisagée précédemment ($\mu_e = \mu_t$)

il vient :

$$\frac{\Delta\rho_{\perp}^{+}}{\rho_o} = \frac{4a(\mu B)^2}{(1+a)^2 + (a-1)^2(\mu B)^2}$$

Quel que soit le modèle envisagé aux très basses températures le nombre d'électrons sera très inférieur au nombre de trous et par conséquent leur rapport a sera voisin de zéro. Dans ces conditions l'expression précédente peut s'écrire :

$$\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho} \sim \frac{4(\mu B)^2}{1+(\mu B)^2} \sim \text{Cte}\left(\frac{(\mu B)^2}{1+(\mu B)^2}\right) \qquad (51)$$

On peut essayer de faire coïncider empiriquement les points expérimentaux avec cette expression en cherchant la meilleure valeur de la mobilité moyenne μ.

Pour ce faire nous avons tenu compte de l'existence probable d'une très faible composante négative et nous avons effectué le meilleur paramétrage qui satisfasse la condition suivante compte tenu de la précision expérimentale :

$$\left(\frac{\Delta\rho_{\perp}^{+}}{\rho_o}\right)_{calc} - \left(\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}\right)_{exp} \geqslant 0$$

On détermine ainsi la mobilité moyenne $\mu = 17{,}5.10^{-6}$ uem CGS qui est pratiquement la même à 4,3° et 1,6°K puisque à ces deux températures la composante positive apparait identique (figure 25,26).

L'accord obtenu entre les points mesurés et les points calculés parait satisfaisant jusqu'à une limite inférieure de 20 Kgauss environ. Aux basses valeurs de l'induction magnétique il apparait une composante négative que l'on pourra évaluer en appliquant une loi d'additivité entre les deux composantes. Deux remarques sont à effectuer concernant ce paramétrage :

- la mobilité moyenne ainsi déterminée est environ trois fois supérieure à celle calculée à partir de l'effet Hall et de la résistivité : l'approximation employée, mobilité identique des trous et des électrons n'est pas valable et le modèle de bande utilisé n'est donc pas satisfaisant.

- D'après la valeur de la mobilité moyenne déterminée à partir de l'effet Hall et de la résistivité, la magnétorésistance transverse positive doit être proportionnelle au carré de l'induction magnétique. Or nous avons trouvé que l'exposant n de l'équation empirique était de l'ordre de 1,75 à 1,80 pour des température supérieures à 4,3°K (tableau 14) ce qui voudrait dire que la mobilité augmente avec la température : c'est une hypothèse peu vraisemblable que nous ne conserverons pas.

III.2.4 Analyse de la variation thermique de la magnétorésistance positive transverse

Sur la figure (27) nous avons porté en fonction du logarithme de la température, la valeur du coefficient c défini à partir de l'équation (43) et celle de la magnétorésistance transverse positive mesurée ou calculée pour une valeur de l'induction magnétique de 10 kgauss (à 4,3° et 1,6°K, la composante a été calculée en utilisant par extrapolation vers les basses inductions magnétiques, le paramétrage effectué tel qu'il vient d'être décrit au précédent paragraphe).

L'examen de cette figure suscite deux commentaires :

- Cette grandeur présente un maximum vers 70°K, plus accusé lorsqu'on examine la constante c puisque celle-ci est liée à la valeur de l'exposant n. L'existence de ce maximum, déjà trouvé par GROMB (30), n'a pas été expliqué mais semble en relation avec l'apparition d'une magnétorésistance négative aux plus basses températures ($T < 50°K$).

- Lorsque la température de mesure devient très basse, inférieure à 5°K environ, cette composante tend vers une valeur constante mais ne semble pas s'annuler. Ce résultat apparait en contradiction avec le modèle de bande habituellement proposé tel que nous l'avons décrit dans le premier paragraphe ; en effet lorsque la température tend vers le zéro absolu il ne doit plus rester qu'un seul type de porteurs, les trous de la bande de valence à ce moment là ; la magnétorésistance positive qui dépend fortement de la température tend à s'annuler ou tout au moins à devenir négligeable (cf. tableau 13). Ce résultat laisse donc présumer que l'on serait toujours en présence d' au moins deux types de porteurs de charge jusqu'aux très basses températures ($T \neq 1°K$).

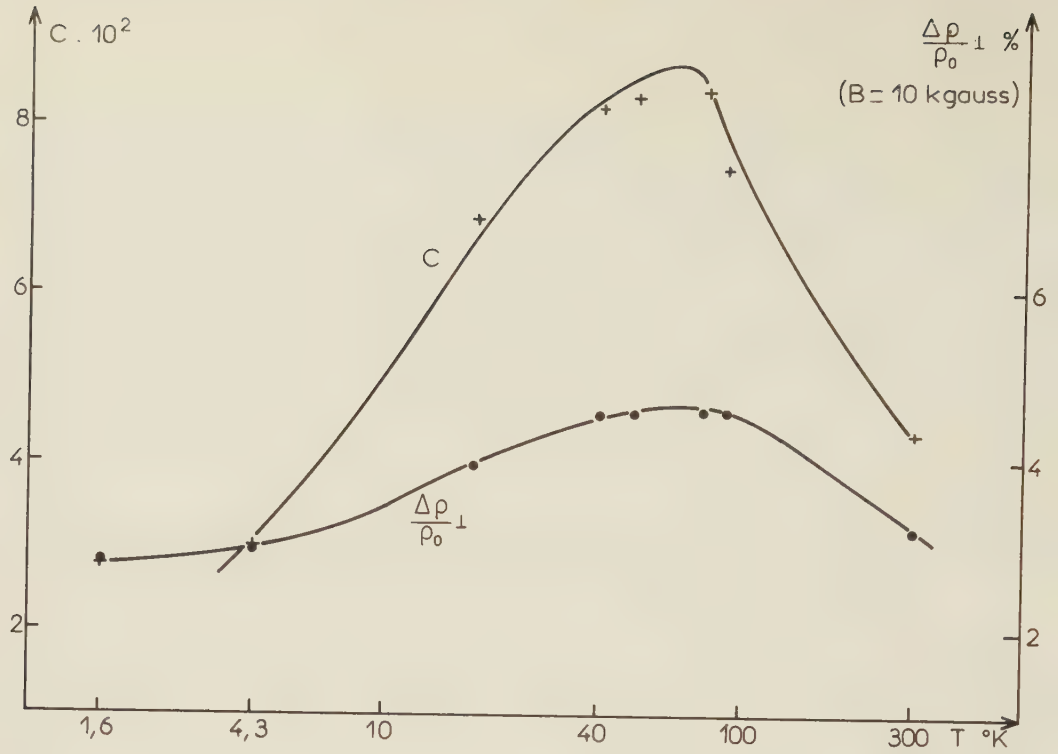

C . 10²
8
6
4
2
C
Δρ/ρ₀ ⊥
Δρ/ρ₀ ⊥ %
(B = 10 kgauss)
6
4
2
1,6
4,3
10
40
100
300 T °K

Fig. 27

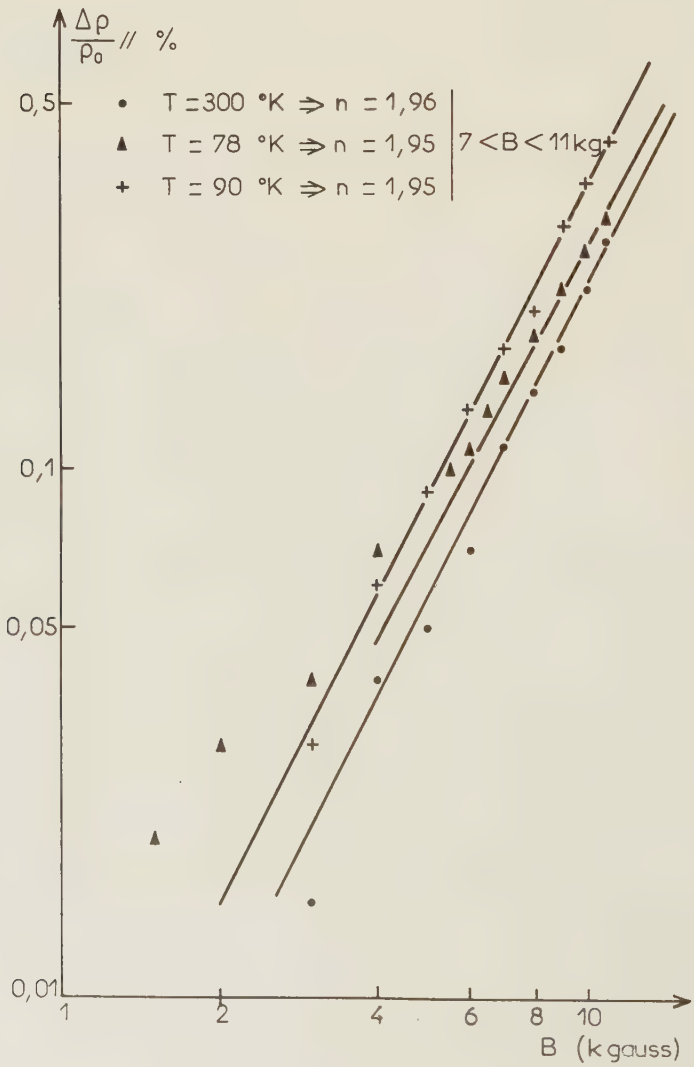

Δρ/ρ₀ // %
0,5
0,1
0,05
0,01
• T = 300 °K ⇒ n = 1,96
▲ T = 78 °K ⇒ n = 1,95
+ T = 90 °K ⇒ n = 1,95
7 < B < 11 kg
1
2
4
6
8
10
B (k gauss)

Fig. 28

III.2.5 Remarques sur la magnétorésistance longitudinale positive.

La magnétorésistance longitudinale positive observée est toujours beaucoup plus faible que son homologue transverse donc plus difficile à analyser. Une seule étude a été effectuée à induction forte (fig.13) et ce, à 4,3°K ; la magnétorésistance longitudinale observée n'est positive qu'à partir de 30 kgauss, on ne peut donc pas l'étudier sans tenir compte de la composante négative. A induction faible ($B \leqslant 11$ Kgauss) la magnétorésistance longitudinale est entièrement positive lorsque la température est supérieure ou égale à 50°K (fig.15). L'analyse en coordonnées logarithmiques (fig.28), montre que l'exposant n est de l'ordre de 1,90 - 1,95 lorsque T = 300°, 90°, 78° et 50°K. On doit se demander quelle est la nature de cette composante longitudinale positive.

Deux possibilités apparaissent :

- La magnétorésistance longitudinale intrinsèque est nulle ($A_{11}=0$)(1). On observe une projection de la composante transverse $\frac{\Delta\rho}{\rho_o}_{\perp}$ due à la désorientation des cristallites autour de l'axe C de la plaquette de pyrocarbone.

- Les cristallites ne sont pas des systèmes rigoureusement isotropes dans les plans graphitiques, ils ne sont pas directement assimilables à des monocristaux (cf paragraphe III-1) et par conséquent la composante A_{11} du tenseur de magnétorésistance dans la mesure où l'on pourrait la définir ne serait pas nulle.

Si on examine les valeurs du rapport des deux composantes aux inductions magnétiquesles plus élevées on observe que cette grandeur est pratiquement constante (tableau 15). (L'existence cachée d'une composante longitudinale négative aux basses températures doit élever la valeur du rapport α).

Ce résultat montre donc que si on ne peut pas rejeter l'hypothèse d'une composante longitudinale intrinsèque c'est la projection de la composante transverse qui est prépondérante puisque les évolutions des deux composantes sont similaires quelles que soient les valeurs de l'induction magnétique et de la température de mesure.

Caractéristiques expérimentales (B et T)	$\alpha = \frac{\left(\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_{o\,exp}}\right)}{\left(\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_{o\,exp}}\right)}$
T = 4,3°K B = 51 Kgauss	19.0
T = 50°K B = 11 Kgauss	19.1
T = 78°K B = 11 Kgauss	17.5
T = 90°K B = 11 Kgauss	11.8
T = 300°K B = 11 Kgauss	14.2

TABLEAU 15

III-3 - ANALYSE DES FIGURES DE ROTATION

Nous allons examiner les figures de rotation, effectuées à 4,3°K à des valeurs variables de l'induction magnétique, et présentées au chapitre II (figure 16, 17 et 18). Nous les avons arbitrairement classées en trois catégories : les figures de rotation à inductions fortes, moyennes et faibles ; nous allons reprendre cette classification en commençant par examiner les cas extrêmes.

III.3.1 - Figures de rotation à inductions magnétiques fortes.

Aux inductions magnétiques élevées la magnétorésistance observée est essentiellement la magnétorésistance positive ; en effet en ce qui concerne la magnétorésistance transverse nous avons montré que l'on pouvait paramétrer son évolution en fonction de l'induction magnétique (cf.III.2.3) et que tant que celle-ci est supérieure à 30 Kgauss la composante négative est négligeable. Il ne nous est pas possible d'affirmer au contraire que la magnétorésistance longitudinale observée est essentiellement due à la composante positive, cependant compte tenu de sa faible valeur nous l'avons admis.

Nous allons utiliser l'expression (45) précédemment définie $\left(\frac{\Delta\rho}{\rho_o}\right)_{exp} = A\cos^m\phi + B\sin^m\phi$ pour paramétrer les résultats expérimentaux.

En utilisant la méthode des moindres carrés un calcul sur ordinateur (IBM.11 30) donne les valeurs suivantes pour les trois paramètres A, B et m, et l'erreur quadratique moyenne E.M (Tableau 16).

B(Kgauss)	A(%)	B(%)	m	E.M
55,015	48,365	1,914	1,478	0,356
51,086	44,181	1,563	1,467	0,378
39,300	31,379	0,569	1,536	0,266
31,440	22,697	0,076	1,581	0,123

TABLEAU 16

Les valeurs de la magnétorésistance transverse positive ($A = \frac{\Delta\rho_{\perp}^{+}}{\rho_o}$) sont pratiquement identiques à celles calculées lors du paramétrage de la courbe expérimentale donnant la variation en fonction de B(cf figure 25) ; en ce qui concerne la magnétorésistance longitudinale positive ($B = \frac{\Delta\rho_{//}^{+}}{\rho_o}$) elle apparait plus faible que celle déterminée expérimentalement, ce qui se traduit par une erreur quadratique moyenne non négligeable. Le paramètre le plus intéressant est m qui croit au fur et à mesure que la valeur de l'induction magnétique diminue ; si on se réfère à la théorie, le paramètre m devrait être égal à 2. Trois raisons peuvent être invoquées, à notre connaissance, pour rendre compte de ce résultat.

1-Technique de mesure : les dimensions de la plaquette doivent être telles que la longueur soit plus grande que la largeur et elle-même plus grande que l'épaisseur sur laquelle les sondes de mesure sont disposées. Les rapports entre les trois dimensions sont importants lorsque la mobilité des porteurs est grande (56) : ce n'est pas le cas ici.

2-Structure de la plaquette : le pyrocarbone est constitué de cristallites qui ne sont pas parfaitement parallèles les uns aux autres, on peut définir un angle de désorientation moyen (48) qui caractérise le degré d'orientation de la plaquette. Dans le premier paragraphe (III.1) de ce chapitre nous avons examiné ce problème et lorsque nous sommes passés de la relation exprimant la figure de rotation relative à un monocristal à celle concernant la plaquette de pyrocarbone nous n'avons pas conservé la relation théorique dans laquelle le cosinus carré de l'angle d'orientation est la variable car nous ne l'avons pas démontré par le calcul.

3 - Validité de l'approximation des "champs faibles" : La théorie valable pour un monocristal exprime que les coefficients de la magnétorésistance sont proportionnels au carré de l'induction magnétique lorsque la loi en cosinus carré de l'angle d'orientation est vérifiée. On est donc, d'après cette théorie, dans l'approximation des champs faibles ($\mu B < 1$). Or expérimentalement d'après le paramétrage de la magnétorésistance transverse à induction forte nous ne sommes plus dans cette approximation ($n = 1{,}35$). Il semble donc logique que m soit inférieur à 2 même si la structure de la plaquette n'a pas d'influence ou tout au moins a une influence secondaire.

Plusieurs faits incitent à penser que la dernière interprétation proposée est la meilleure. D'autre part nous avons montré que l'exposant m croit lorsque la valeur de l'induction magnétique diminue (tableau 16) ; en outre l'examen des figures de rotation effectuées à 78°K et 300°K (figure 21 et 22) températures auxquelles il ne semble plus exister de magnétorésistance négative et où l'on se trouve dans l'approximation des champs faibles montrent qu'effectivement l'exposant m doit être voisin de 2.

- D'autre part, des expériences effectuées sur un pyrographite possédant une structure quasiment monocristalline (PGCGL) (57) et ne présentant pas de magnétorésistance négative, ont montré que l'exposant m diminue régulièrement lorsque la valeur du produit μB augmente et dépasse l'unité.

Ce résultat préliminaire confirme celui obtenu par YOUNG et coll (32) sur un échantillon similaire, résultat qu'ils avaient interprété comme dû à la désorientation des cristallites dans le pyrographite.

Il apparait ainsi un résultat intéressant qui montre un certain parallélisme entre les évolutions des exposants n et m, il reste à confirmer expérimentalement et à justifier théoriquement une telle corrélation.

III.3.2 - Figures de rotation à induction magnétique très faible

A partir des résultats antérieurs obtenus sur plusieurs semi-conducteurs nous avons supposé au début de notre travail que nous serions en présence d'une magnétorésistance négative isotrope (cf.paragraphe I-2-2). Or, lors de l'exposé de nos résultats expérimentaux nous avons vu que la figure de rotation obtenue à la plus faible valeur de l'induction magnétique ($B \simeq 500$ gauss) (fig.18) est une figure symétrique par rapport à l'axe des abscisses de celle obtenue pour la magnétorésistance positive seule. La figure de rotation obtenue à induction magnétique supérieure ($B \simeq 1$ KGauss) est déjà assymétrique et ne correspond plus à l'approximation des "champs très faibles" que l'on définit comme étant le domaine où la magnétorésistance négative est proportionnelle au carré de l'induction ainsi que le prévoit les théories.

Dans cette zone de faibles valeurs de l'induction magnétique il existe, dans l'hypothèse d'une additivité des deux composantes, une magnétorésistance positive également proportionnelle au carré du champ magnétique que l'on peut estimer à partir du paramétrage effectué pour la magnétorésistance transverse positive (cf. paragraphe III.2.3) et qui est négligeable.

De la même manière que pour la magnétorésistance positive nous avons posé que la magnétorésistance négative obéit à une équation empirique du type

$$\frac{\Delta\rho^-}{\rho_o} = C \cos^p \phi + D \sin^p \phi \qquad (52)$$

où ϕ est toujours l'angle entre l'axe C de la plaquette et l'induction magnétique B.

$C \equiv \frac{\Delta\rho^-_\perp}{\rho_o}$ et $D \equiv \frac{\Delta\rho^-_{//}}{\rho_o}$ sont les magnétorésistances négatives transverses et longitudinales.

On peut paramétrer la courbe expérimentale et déterminer les trois paramètres C, D et p (tableau 17). On remarque immédiatement que l'exposant est voisin de 2 ; si on effectue un second paramétrage en fixant p = 2 on obtient un résultat satisfaisant, l'erreur quadratique moyenne étant à peine supérieure à celle calculée avec le premier paramétrage (tableau 17).

paramètre	paramétrage libre	paramétrage en posant p = 2
C	- 0,1830	- 0,1839
D	- 0,0135	- 0,0170
p	1,866	2,000
E.M	0,00314	0,00388

TABLEAU 17

La magnétorésistance négative se comporte comme la magnétorésistance positive c'est-à-dire comme une grandeur tensorielle. Ce résultat nouveau va à l'encontre des résultats antérieurs qui font état d'une magnétorésistance isotrope (cf. paragraphe I.2). Il apparait lié à l'existence d'une structure cristalline beaucoup plus anisotrope que celle rencontrée dans les autres semi-conducteurs (en général de structure cubique ou quadratique).

III.3.3 Figures de rotation à inductions magnétiques moyennes

Nous avons utilisé deux relations similaires pour interpréter la magnétorésistance positive à inductions magnétiques forteset la magnétorésistance négative à induction magnétique très faible. Comme nous l'avons vu lors de la présentation des résultats expérimentaux nous obtenons une famille de courbes qui présente une évolution progressive lorsque l'induction magnétique varie. Ainsi dans l'hypothèse d'une relation d'additivité entre les deux composantes on peut écrire la relation suivante :

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\rho_o}\right)_{exp} = A\cos^m\phi + B\sin^m\phi + \cos^p\phi + D\sin^p\phi \quad (53)$$

Nous avons essayé de paramétrer par la méthode des moindres carrés l'ensemble des résultats obtenus ; pour ce faire nous avons arbitrairement séparé les figures de rotation en deux groupes suivant le signe prépondérant de la magnétorésistance observée ce qui nous a permis de faire quelques simplifications.

- Cas où la magnétorésistance observée est positive :
(25,5 < B(KGauss) < 11). La magnétorésistance transverse négative est négligeable devant la composante positive, l'équation générale (53) se réduit à :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_o} = A\cos^m\phi + B\sin^m\phi + D\sin^p\phi \quad (54)$$

Le paramétrage des courbes de rotation effectuees à 25,54 ; 19,65 et 11 kgauss donne un résultat satisfaisant (tableau 18) ; on remarque cependant que l'exposant p présente des valeurs assez élevées. Un second essai a été effectué en posant la magnétorésistance longitudinale positive nulle ; il permet de constater les différences importantes trouvées sur les valeurs des exposants m et p.(tableau 18).

B(KGauss)	paramètres					
	A	B	m	D	p	E.M
25,540	16,324	0,269	1,942	- 2,777	4,966	0,0496
	16,412	0	1,663	- 0,285	3,230	0,0966
19,650	10,138	0,0109	1,790	- 0,524	4,779	0,0974
	10,130	0	1,753	- 0,525	2,841	0,1031
11,000	3,70	0	2,311	- 0,696	3,166	0,1221

TABLEAU 18

- Cas où la magnétorésistance observée est partiellement ou totalement négative ($9 \leqslant B\ (\text{kgauss}) \lesssim 1$)

Dans ce domaine de l'induction magnétique la composante longitudinale positive est négligeable (cf. paragraphe III.2.4) ; nous avons employé l'expression suivante :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_o} = A \cos^m \phi + C \cos^m \phi + D \sin^p \phi \quad (55)$$

Le calcul à l'ordinateur a fourni les résultats présentés sur le tableau 19.

A première vue le résultat obtenu est satisfaisant, l'erreur quadratique moyenne est faible et ne dépasse pas l'erreur expérimentale usuelle.

L'évolution des paramètres caractérisant les différentes composantes de la magnétorésistance est assez satisfaisante ; ainsi pour la magnétorésistance transverse positive $A \equiv \frac{\Delta\rho}{\rho_o}_{\perp}$ les valeurs obtenues sont voisines de celles fournies par le paramétrage (cf paragraphe II-2) en supposant une loi d'additivité. En ce qui concerne les deux composantes de la magnétorésistance négative, Il faut remarquer que pour les grandes valeurs de l'induction magnétique on obtient $|D| > |C|$, cette inégalité se renversant lorsque l'induction magnétique a diminué. En outre les valeurs données aux exposants m et p sont assez inattendues et peu vraisemblables. Il est diffi-

cile en effet de donner une signification physique aux valeurs de m et p supérieures à 2 et il n'apparait pas d'évolution régulière de ces deux paramètres. Pour tenter d'expliquer ce résultat il faut souligner les limites de la technique de paramétrage utilisée. Il est apparu dans de nombreux cas que le calcul des moindres carrés était long et que l'on obtenait difficilement une convergence des calculs c'est-à-dire que la somme des carrés des erreurs ne tendait pas rapidement vers une valeur petite. Ainsi en tenant compte de la précision expérimentale, il est facile de trouver plusieurs jeux de paramètres fournissant une solution mathématique convenable. Afin d'essayer de trouver une solution physique plus satisfaisante nous avons essayé d'imposer des valeurs plausibles aux grandeurs A, C et D et de calculer les valeurs des exposants m et p mais les résultats n'ont guère été plus concluants.

Il apparait ainsi que l'hypothèse de deux types de magnétorésistances indépendantes et additives est difficile à vérifier sur cet échantillon lorsqu'on se trouve dans des conditions expérimentales telles que les deux composantes soient du même ordre de grandeur.

B(KGauss)	Paramètres					
	A	m	C	D	p	E.M
9	2,415	2,550	- 0,1533	-0,6416	2,366	0,0579
8	2,650	2,900	- 0,130	-0,6183	2,044	0,0562
7	1,026	3,494	- 0,1360	-0,5993	1,822	0,0535
6	0,6323	3,616	- 0,320	-0,520	1,166	0,0675
5	0,6033	3,00	- 0,676	-0,335	0,811	0,0395
4	0,4563	3,250	- 0,8796	-0,253	0,955	0,0242
3	0,332	3,253	- 0,9748	-0,1755	1,081	0,0249
2	-	-	-	-	-	-
1	0,583	2,407	- 1,00	-0,0232	1,870	0,0122

TABLEAU 19

III.3.4 Commentaire sur l'anisotropie de la magnétorésistance négative.

L'étude en fonction d'un nouveau paramètre, l'angle existant entre l'axe C de la plaquette et l'induction magnétique, nous a permis de mettre en évidence le caractère anisotrope de la magnétorésistance négative après avoir confirmé et mis en évidence les anomalies relatives à la magnétorésistance positive. Les études antérieures de figure de rotation sont peu nombreuses ; en ce qui concerne les carbones seul YAZAWA (39) a fait quelques mesures mais il n'a pas étudié le problèmes du point de vue phénoménologique bien que certaines des courbes qu'il a publié laissent préssentir le comportement que nous avons mis en évidence. Très récemment GORDY et FRIZCHE (58) ont mesuré la magnétorésistance de résistances commerciales au carbone entre 0,35 et 1°K ; ils ont trouvé une magnétorésistance négative très faiblement dépendante de l'angle d'orientation mais ils attribuent cette faible variation à l'existence sous jacente de la composante positive. Ils se réfèrent pour cela aux travaux déjà effectués sur les autres semi-conducteurs qui font état d'une magnétorésistance négative telle que la prévoit la théorie de TOYOZAWA (cf. paragraphe I.2).

Nous allons examiner maintenant de plus près le comportement de la magnétorésistance négative aux basses inductions magnétiques et aux diverses températures de mesures afin de confronter nos résultats à cette théorie.

III-4 INTERPRETATION DES VARIATIONS THERMIQUES DE LA MAGNETORESISTANCE NEGATIVE

Lorsque nous avons défini l'objet de notre étude nous nous sommes proposés d'étudier le comportement de la magnétorésistance négative et de voir en particulier si la théorie de TOYOZAWA pouvait être utilisée ainsi que l'a suggéré DELHAES (15).

Cependant, nous avons mis en évidence un comportement anisotrope de la magnétorésistance négative qui n'apparait pas dans les autres semi-conducteurs et ne semble pas avoir été prévu théoriquement. Néanmoins nous allons tenter d'interpréter nos résultats en utilisant cette théorie et tout d'abord dans la limite des inductions magnétiques très faibles.

III.4.1 Analyse de la magnétorésistance négative dans l'approximation des "champs faibles".

Lorsque l'induction magnétique tend vers une valeur nulle nous avons vu que l'on pouvait utiliser la relation suivante (équation 42).

$$\left| \frac{\Delta\rho_{\perp}^{-}}{\rho_o B^2} \right|^{\frac{1}{2}} \quad \alpha \quad T - \theta$$

En posant pour la magnétorésistance transverse

$$\frac{\Delta\rho_{\perp}^{-}}{\rho_o} = \left| a_{\perp} \right| B^2$$

et pour la magnétorésistance longitudinale

$$\frac{\Delta\rho_{//}^{-}}{\rho_o} = \left| a_{//} \right| B^2$$

on peut écrire la relation (42) sous la forme analogue à l'équation de Curie Weiss pour le paramagnétisme :

$$\left| a_{\perp} \right|^{\frac{1}{2}} \quad \alpha \quad \frac{1}{T-\theta_{\perp}} \qquad (56)$$

$$\left| a_{//} \right|^{\frac{1}{2}} \quad \alpha \quad \frac{1}{T-\theta_{//}} \qquad (57)$$

Dans le domaine des faibles inductions magnétiques nous savons que la composante positive de la magnétorésistance est négligeable; nous avons donc porté les valeurs expérimentales en fonction du carré de l'induction magnétique aux diverses températures de mesure (figures 29, 30). L'examen de ces figures montre que, compte tenu de la précision des mesures, la magnétorésistance négative aux très faibles inductions magnétiques est proportionnelle à B^2. La détermination des pentes à l'origine qui permet de détermi-

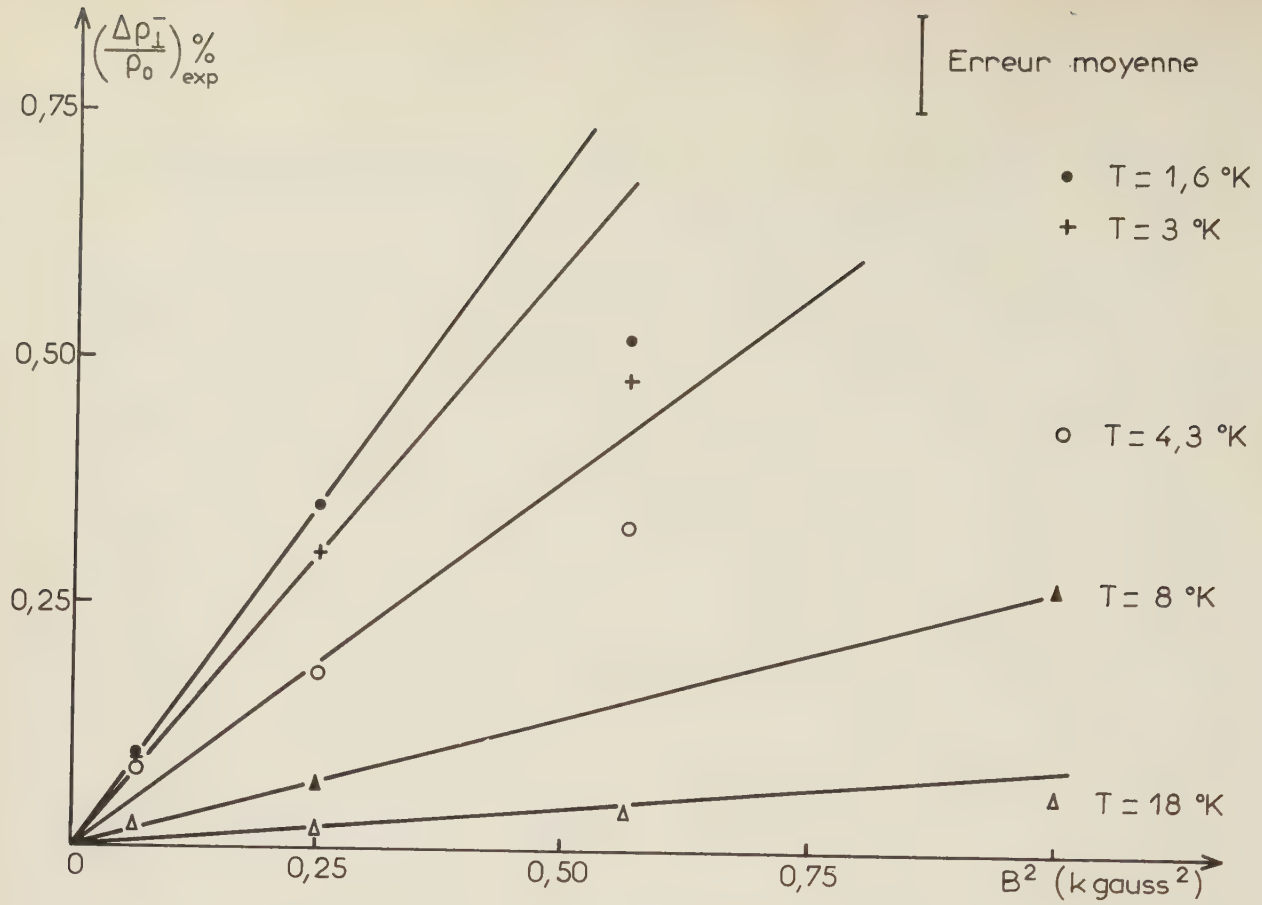

$\left(\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_0}\right)_{exp}$ %
Erreur moyenne
0,75
0,50
0,25
0
0,25
0,50
0,75
B^2 (k gauss^2)
• T = 1,6 °K
+ T = 3 °K
o T = 4,3 °K
▲ T = 8 °K
Δ T = 18 °K

Fig. 29

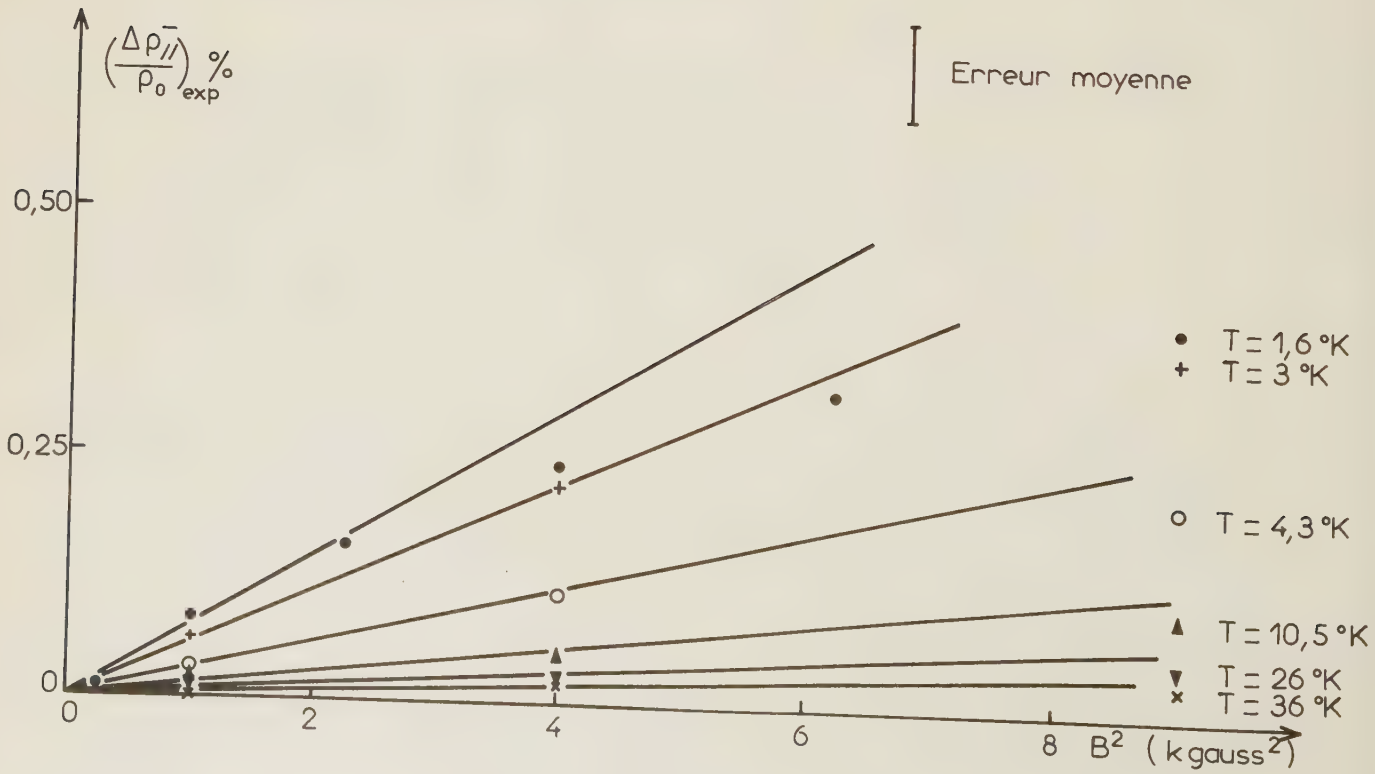

$\left(\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_0}\right)_{exp}$ %
Erreur moyenne
0,50
0,25
0
0
2
4
6
8
B^2 (k gauss^2)
• T = 1,6 °K
+ T = 3 °K
o T = 4,3 °K
▲ T = 10,5 °K
▼ T = 26 °K
× T = 36 °K

Fig. 30

ner les valeurs des coefficients $a_\perp$ et $a_{//}$ a été effectuée quoique la précision de cette mesure ne soit pas très grande. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau 20.

Magnétorésistance transverse		Magnétorésistance longitudinale	
T(°K)	$a_\perp$%(Kgauss^{-2})	T(°K)	$a_{//}$ %(Kgauss^{-2})
1.6	1.40	1.6	0.0712
3.0	1,22	3.0	0.0562
4.3	0.76	4.3	0.0300
8	0.27	10.5	0.0137
18	0.09	26	0.0075
		36	0.0050

TABLEAU 20

En utilisant les relations (56,57) on peut essayer de déterminer la température de Curie associée à la magnétorésistance négative (fig.31). Pour la composante transverse, compte tenu de l'incertitude expérimentale, on peut déterminer une température de Curie $\theta = -2°K$. Pour la composante longitudinale une relation linéaire ne peut être vérifiée que dans le domaine des basses températures si on admet de prendre la même température de Curie $\theta = -2°K$ les points correspondants aux plus hautes températures ne se placent pas sur la droite ainsi définie. Dans cette première étude nous admettons que $\theta_\perp = \theta_{//} = -2°K$ sans nous préoccuper des déviations constatées.

Le résultat obtenu est analogue à celui déjà trouvé tout d'abord par SAZAKI (22) et ensuite par divers auteurs sur les semi-conducteurs classiques (cf paragraphe I.2.2). La faible température de Curie trouvée peut être attribuée à un couplage spin-spin de type antiferromagnétique comme dans les autres semi conducteurs;nous confirmons néanmoins l'existence d'une magnétorésistance négative anisotrope que l'on peut définir à 0°K en extrapolant les valeurs des coefficients $a_\perp$ et $a_{//}$ f(T°K) :

$$(a^\circ_\perp - a^\circ_{//}) \neq (1.450 - 0.075)10^{-2} = 1.325\ 10^{-2}\ (k.gauss^{-2})$$

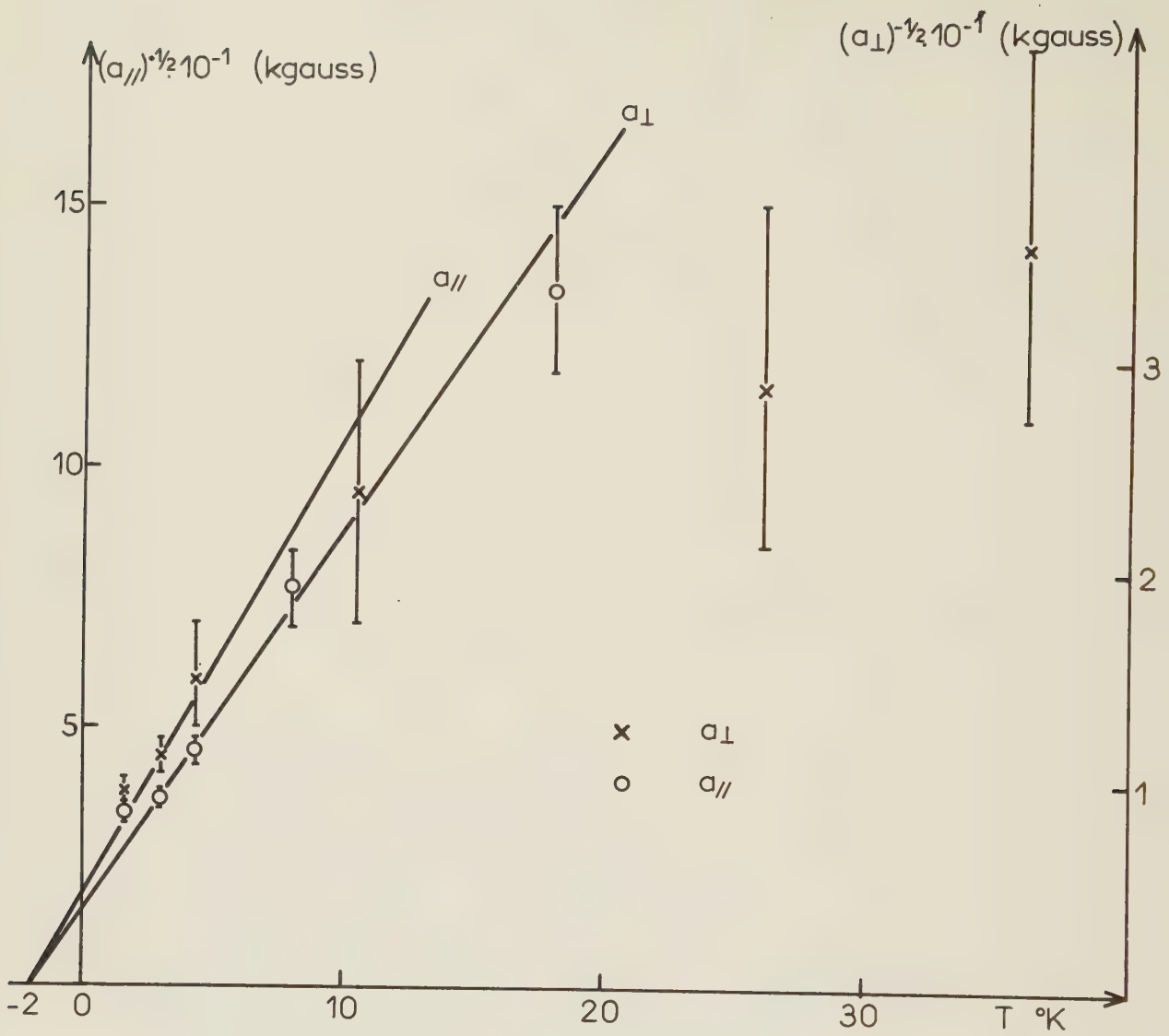

$(a_{//})^{-1/2}10^{-1}$ (kgauss)
$(a_{\perp})^{-1/2}10^{-1}$ (kgauss)
$a_{\perp}$
$a_{//}$
15
10
5
3
2
1
× $a_{\perp}$
o $a_{//}$
-2
0
10
20
30
T °K

Fig. 31

III.4.2 Analyse de la magnétorésistance négative en fonction de l'induction magnétique

Dans la cas général d'une induction magnétique de valeur quelconque nous avons vu paragraphe I.2.2 que la relation suivante doit rendre compte des faits expérimentaux.

$$\left| \frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \right|^{\frac{1}{2}} = f\left(\frac{B}{T-\theta} \right)$$

où f est une fonction qui peut être assimilée à la fonction de Brillouin. Nous avons donc essayé de le vérifier en examinant séparément la magnétorésistance transverse et son homologue longitudinale.

- Cas de la magnétorésistance transverse négative

Lorsque l'induction magnétique est supérieure à 1000 gauss la composante positive n'est plus négligeable. En utilisant la relation d'additivité entre les deux composantes, relation qui peut être utilisée tant qu'une des composantes est nettement plus grande que l'autre, on peut écrire

$$\left(\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o} \right)_{exp} = -\left[f\left(\frac{B}{T-\theta} \right) \right]^2 + C\,H^2 \qquad (58)$$

La composante positive est une fonction quadratique de l'induction magnétique dans l'approximation des champs faibles ; nous avons vu qu'il ne semble pas en être toujours exactement ainsi aux valeurs plus élevées de l'induction magnétique et de la température (cf.paragraphe III.2). Cependant c'est une bonne approximation dans le domaine étudié ici où la composante négative est toujours prépondérante.

En choisissant pour la constante C les valeurs déterminées précédemment (voir figure 27) on peut calculer la magnétorésistance transverse négative aux diverses températures comprises entre 1,6 et 18°K et porter la racine carré de la valeur absolue de cette grandeur en fonction de B/T-θ.

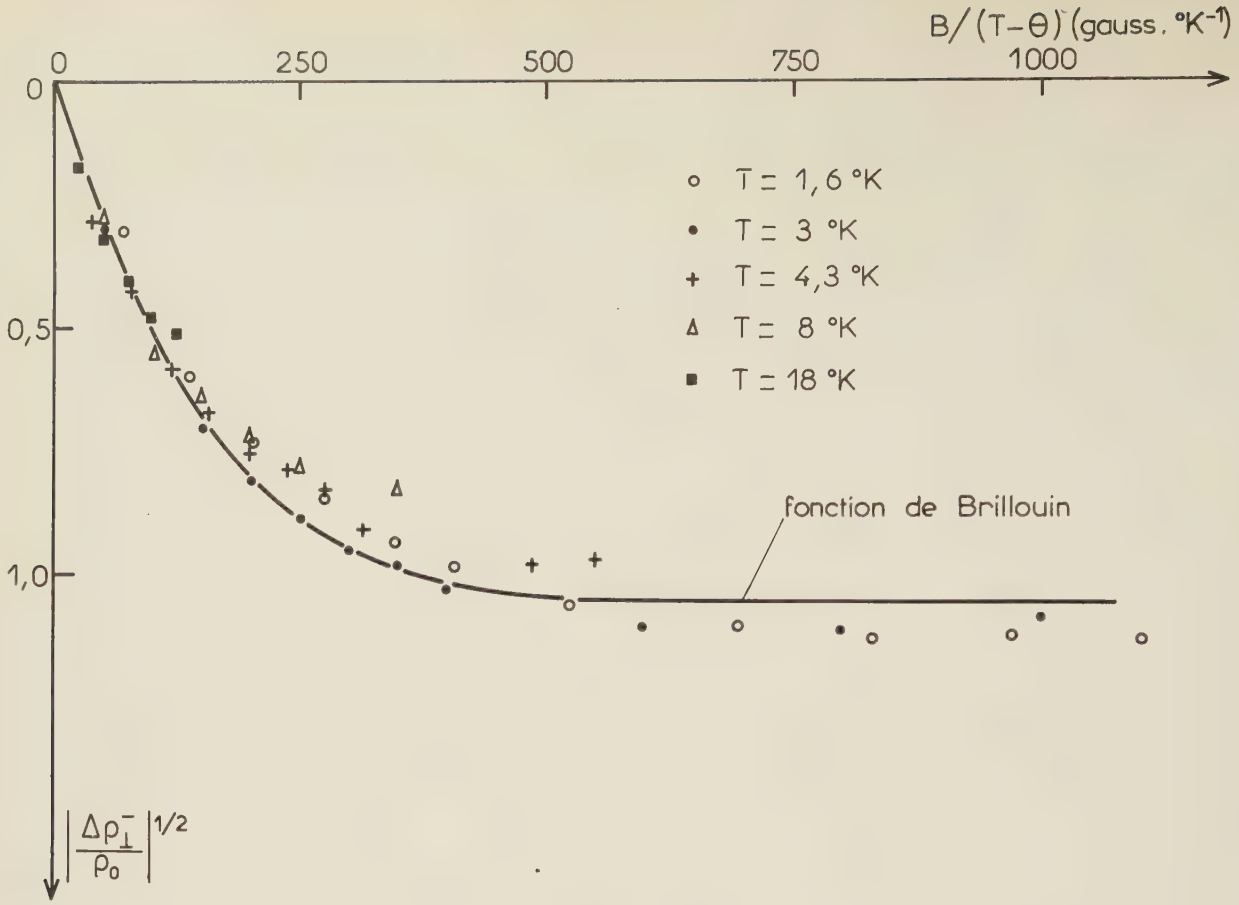

B/(T−θ) (gauss. °K⁻¹)
0
250
500
750
1000
0
0,5
1,0
T = 1,6 °K
T = 3 °K
T = 4,3 °K
T = 8 °K
T = 18 °K
fonction de Brillouin
$\left|\frac{\Delta\rho_{\perp}^{-}}{\rho_0}\right|^{1/2}$

Fig. 32

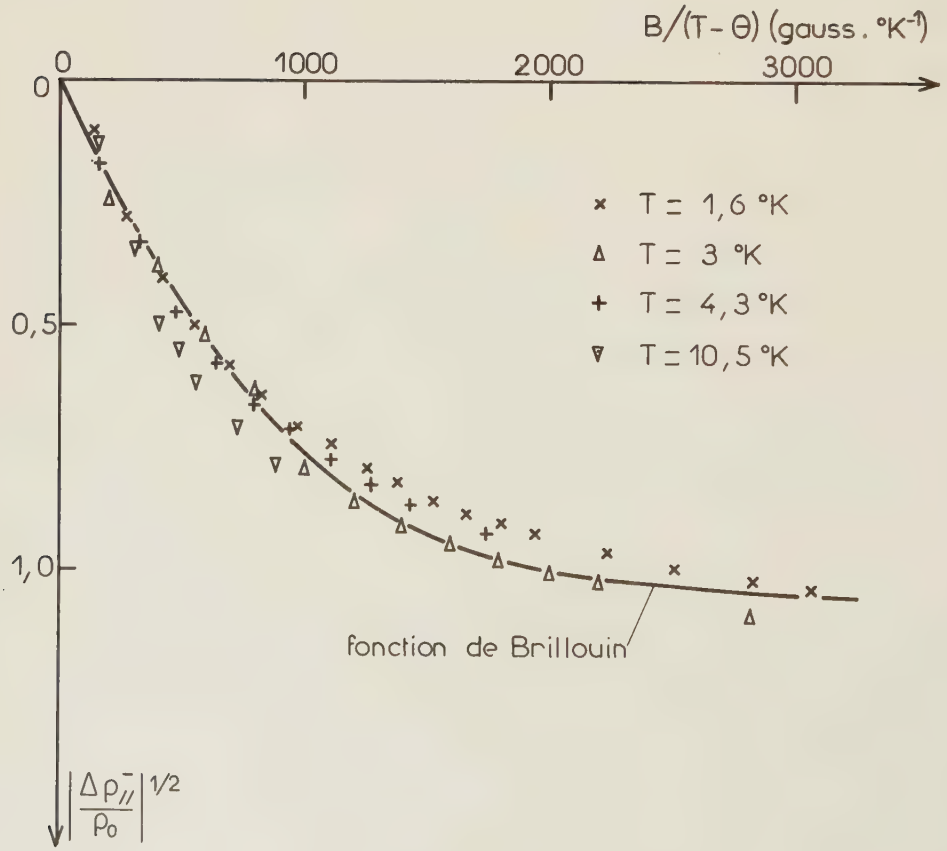

B/(T − θ) (gauss. °K⁻¹)
0
1000
2000
3000
0
0,5
1,0
T = 1,6 °K
T = 3 °K
T = 4,3 °K
T = 10,5 °K
fonction de Brillouin
$\left|\frac{\Delta\rho_{//}^{-}}{\rho_0}\right|^{1/2}$

Fig. 33

L'ensemble des résultats obtenus est rassemblé sur la fig.32 ; on constate effectivement qu'une courbe unique ayant la forme d'une fonction de Brillouin rend compte du comportement de la magnétorésistance transverse négative. Aux faibles valeurs du rapport $\frac{B}{T-\theta}$ c'est-à-dire dans l'approximation $\mu B \ll kT$ on observe une relation linéaire précédemment définie du type loi de Curie Weiss ; au contraire lorsque le rapport $\frac{B}{T-\theta}$ est grand ($\mu B \# kT$) on constate qu'il y a saturation de cette composante, saturation qui est toujours masquée par la croissance de la magnétorésistance positive sur les courbes expérimentales.

- Cas de la magnétorésistance longitudinale négative fig.33

Nous avons effectué le même calcul pour la magnétorésistance longitudinale négative observée entre 1,6 et 10,5°K excluant ainsi les résultats obtenus à 26° et 36°K ainsi que nous l'avons proposé au paragraphe précédent.

Pour évaluer la composante positive nous avons admis à partir des résultats obtenus précédemment (cf paragraphe III.2.5 et tableau 15) que celle-ci était 15 fois plus faible que son homologue transverse.

De la même manière que pour la magnétorésistance transverse négative on obtient après calculs les résultats présentés sur la figure 33 . Ici aussi l'ensemble des points expérimentaux se place autour d'une courbe unique semblable à celle obtenue pour la magnétorésistance transverse.

- Comparaison des deux magnétorésistances longitudinale et transverse

Lorsqu'on compare ces deux courbes on constate que la valeur de saturation des deux magnétorésistances, longitudinale et transverse, est identique :

$$\left(\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\rho_o}\right)_{\frac{B}{T-\theta}\to\infty} = \left(\frac{\Delta\rho_{//}}{\rho_o}\right)_{\frac{B}{T-\theta}\to\infty} = 1{,}20\ \%$$

Dans l'hypothèse de l'existence d'une valeur limite constante, l'anisotropie de magnétorésistance négative devrait donc disparaître à forte induction magnétique ; malheureusement on ne peut pas l'observer expérimentalement car elle est masquée par la composante positive qui devient alors prépondérante.

On peut montrer que l'anisotropie de magnétorésistance négative disparaît en portant sur une courbe unique les fonctions $\left|\frac{\Delta\rho_{\perp}^{-}}{\rho_o}\right|^{\frac{1}{2}}$ et $\left|\frac{\Delta\rho_{//}^{-}}{\rho_o}\right|^{\frac{1}{2}}$ en fonction de la coordonnée réduite $x = k\left(\frac{B}{T-\theta}\right)$

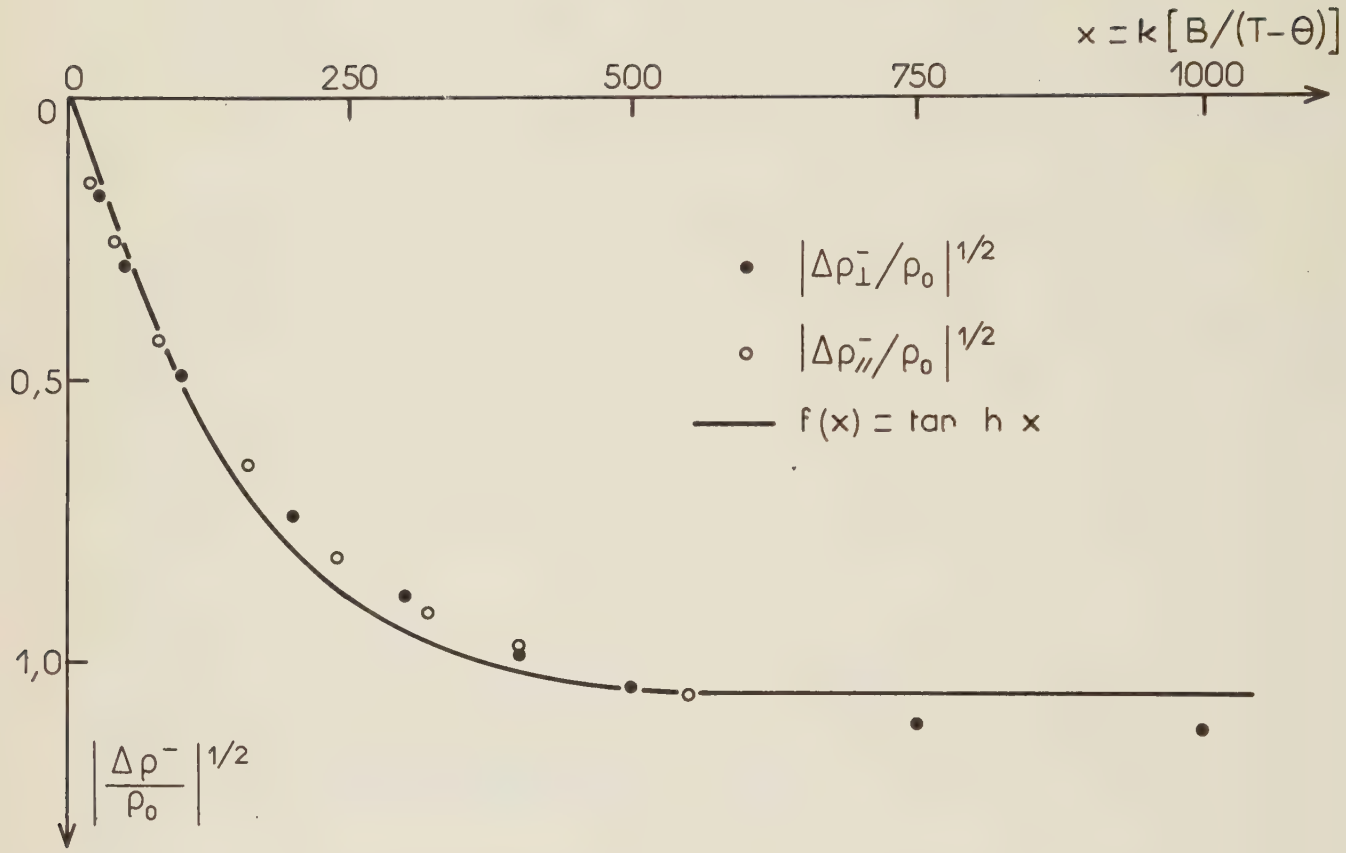

x = k [B/(T-θ)]
0
250
500
750
1000
0
0,5
1,0
$\left|\frac{\Delta\rho^-}{\rho_0}\right|^{1/2}$
$\left|\Delta\rho_\perp^-/\rho_0\right|^{1/2}$
$\left|\Delta\rho_{/\!/}^-/\rho_0\right|^{1/2}$
f(x) = tan h x

Fig. 34

Il suffit de poser k = 1 pour la composante transverse et k = 0,2 pour la composante longitudinale (fig.34). On obtient alors un résultat identique à celui obtenu par HALBO et SLADEX (24) sur GaAs-n.

D'après la théorie cette courbe unique doit ressembler à une fonction de Brillouin. C'est ce que nous avons vérifié en paramétrant les résultats obtenus en utilisant une fonction de Brillouin pour laquelle $S = \frac{1}{2}$; c'est-à-dire dans le cas où les moments magnétiques localisés sont des électrons célibataires. Le résultat obtenu est assez satisfaisant (fig.34) ce qui permet de vérifier complètement la théorie proposée.

Le seul résultat qui demeure à élucider est lié à la nature de l'anisotropie de la magnétorésistance négative et la signification physique de ce paramètre k que nous avons défini pour superposer les deux courbes obtenues.

III.4.3 Relation entre la théorie de TOYOZAWA et la forme des bandes d'énergie.

La forme des bandes d'énergie dans un solide non-cristallin est différente de celle présentée par un solide où la tripériodicité du réseau est parfaite ainsi que l'a souligné MOTT (59). Lorsqu'on est en présence d'un semi-conducteur la bande d'énergie interdite disparaît ; elle est remplacée par des états d'énergie pseudo-localisés dont l'existence est liée au degré "d'amorphicité" du solide considéré (60). On dit que la bande d'énergie interdite est remplacée par un "gap" de mobilité (fig.35a). Dans certains cas il pourrait même apparaître un pic de densité d'états constitué de niveaux d'énergie localisés (fig.35b).

L'existence d'une telle structure de bandes dans les carbones pré-graphitiques a déjà été proposée par YOUNG (52) ainsi que nous l'avons dit au début de ce chapitre lorsque nous avons discuté de la validité de la théorie calssique de la magnétorésistance positive (paragraphe III.2.1). A présent, en comparant la forme des bandes d'énergie dans les semi-conducteurs classiques dopés (fig. page 28) et la forme des bandes d'énergie liée au degré d'amorphicité de la substance, on peut effectuer une corrélation plus étroite. Pour effectuer cette comparaison reprenons l'idée principale émise par TOYOZAWA (16). Ce dernier avait remarqué que la magnétorésistance négative existant dans les semi-conducteurs dopés ressemblait à celle observée

dans les alliages dilués. Ces alliages dilués sont constitués de métaux nobles diamagnétiques contenant des ions magnétiques en faible concentration ; il y a interaction entre ces spins localisés dont l'orientation préférentielle est une fonction de B et de T, par l'intermédiaire de l'interaction d'échange, avec les porteurs de charge libres. Il résulte une modification du libre parcours moyen des porteurs proportionnelle à la magnétisation des ions magnétiques. TOYOZAWA a proposé un mécanisme analogue dans le cas des semi-conducteurs ; dans ces matériaux il existe des imperfections cristallines liées à l'existence de sites d'impuretés distribués au hasard par dopage. Ainsi des sites relativement isolés de leurs voisins peuvent posséder des spins partiellement localisés et jouer un rôle analogue à celui des impuretés magnétiques dans les alliages dilués.

A la lumière de ce que nous venons d'exposer sur la forme des bandes d'énergie d'une part, et sur la théorie de TOYOZAWA d'autre part, on voit que si l'on relie l'existence d'états d'énergie pseudo-localisés à la non-cristallinité du solide étudié, c'est-à-dire à l'existence d'un grand nombre de défauts de réseau, ceux-ci peuvent jouer un rôle identique à celui des impuretés dans les semi-conducteurs cristallins dopés. Nous justifions par conséquent l'utilisation de la théorie de TOYOZAWA dans la présente étude en généralisant son domaine d'application aux semi-conducteurs non-cristallins.

Remarque

L'existence de spins "pseudo-localisés" prévue dans cette théorie est à rapprocher des résultats obtenus par ailleurs en RPE. En effet l'étude RPE des carbones montre la coexistence, dans certains cas, de centres paramagnétiques localisés et de porteurs de charge libres. A partir d'un modèle identique à celui présenté ici il est possible d'interpréter les résultats obtenus (61). Une comparaison plus étroite des résultats est cependant nécessaire car on ne peut pas identifier les centres paramagnétiques localisés détectés en RPE aux électrons situés sur les niveaux d'énergie pseudo localisés.

III.4.4. Conclusion sur la magnétorésistance négative

La théorie de TOYOZAWA apparait ainsi capable d'interpréter les résultats obtenus sur cet échantillon de pyrocarbone. Elle présente un caractère beaucoup plus général que les théories présentées par YAZAWA et FUJITA; cette dernière en particulier apparait comme très limitée (cf. paragraphe I.3.2). Il faut cependant remarquer que la théorie de YAZAWA, essentiellement basée sur l'existence de niveaux d'énergie accepteurs d'électrons juste au dessus

du niveaux de Fermi, peut être reconsidérée dans le cadre du modèle de bande envisagé ici. Une première tentative a d'ailleurs été effectuée très récemment dans le cas des semi-conducteurs classiques (62). Une théorie plus complète considérant à la fois les variations du nombre de porteurs et de leur mobilité permettrait de rendre compte de la magnétorésistance globale quelle soit positive ou négative sans tenter de séparer plus ou moins arbitrairement les deux composantes en utilisant une loi d'additivité : on pourrait espérer ainsi généraliser la notion de magnétorésistance à tous les types de solides homogènes quelque soit leur degré de perfection cristalline.

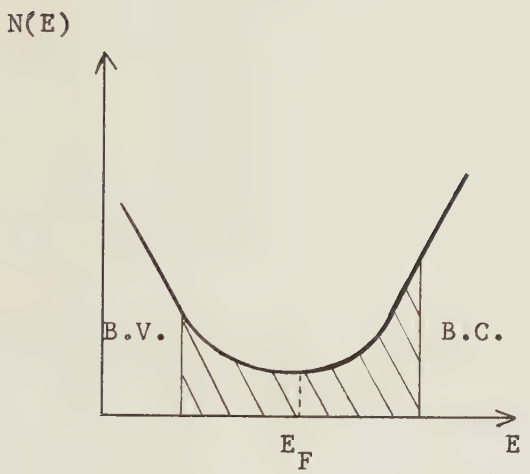


Figure 35 a

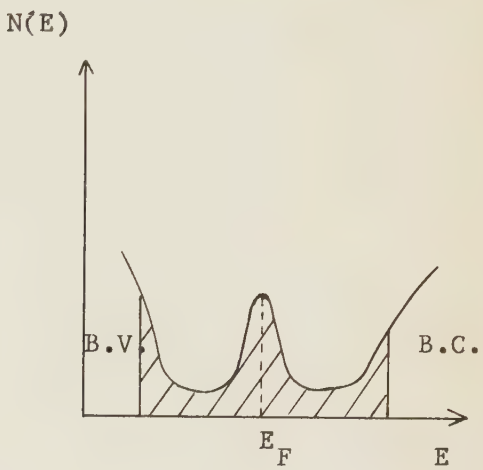


Figure 35 b

- CONCLUSION -

Dans le but de préciser la notion de magnétorésistance dans le cas de solides non cristallins tels que les carbones prégraphitiques, nous avons étudié un seul échantillon de pyrocarbone préalablement sélectionné.

Afin d'analyser complètement la magnétorésistance de cet échantillon en fonction d'un certain nombre de variables(induction magnétique, température, angle entre l'induction magnétique et la normale à la plaquette - échantillon), nous avons mis au point divers appareillages permettant de réaliser des figures de rotations à des températures comprises entre 1,6°K et 300°K et pour des inductions magnétiques variant de 250 G à 60 000 G.

La magnétorésistance positive mesurée en fonction de l'induction magnétique et à température variable se comporte de manière classique mais ne s'interprète pas dans le cadre du modèle habituel à deux bandes dans l'approximation des "champs faibles". Cependant, nous avons utilisé ce modèle afin de paramétrer la variation de la magnétorésistance positive en fonction de l'induction magnétique lorsque celle-ci est élevée (de 30 à 60 KG), domaine où la magnétorésistance négative est (si elle existe) négligeable.

D'autre part, l'étude des figures de rotation nous a permis de confirmer l'anisotropie de la magnétorésistance positive (induction forte), de mettre en évidence pour la première fois, une magnétorésistance négative anisotrope (induction faible) et de montrer qu'une loi d'additivité simple entre ces deux grandeurs ne pouvait être utilisée (induction moyenne).

Dans le domaine des très faibles inductions magnétiques où la magnétorésistance positive est très faible nous avons cependant utilisé en première approximation cette hypothèse d'additivité ; pour diverses températures nous avons pu ainsi déterminer la variation de la magnétorésistance négative en fonction de l'induction magnétique. Nous avons analysé cette variation dans le cadre de la théorie de Toyozawa qui interprète la magnétorésistance négative par l'intéraction des électrons de la bande de conduction et des spins localisés.

Cette théorie présente un caractère beaucoup plus général que celles déjà proposées pour interpréter la magnétorésistance négative dans les carbones ; elle apparaît donc de ce point de vue plus satisfaisante.

Il reste cependant à préciser l'origine de l'anisotropie de magnétorésistance négative et le domaine de validité de la théorie de Toyozawa qui dans notre cas, se restreint certainement à celui des inductions magnétiques très faibles.

BIBLIOGRAPHIE

(1) A.C. BEER, Galvanomagnetic effects in Semi-Conductors, Supplement 4 to Solid State Physics, New-York (1963).

(2) N. BOCCARA, Les principes de la thermodynamique statistique, P.U.F

(3) JURETSCHKE, Acta Cryst 8, 716 (1955)

(4) BHAGAVANTAM, Crystal symetry and Physical properties, Acad. Press

(5) J.P. JAN, Solid states Physics (F.Seitz and D. Turnbull, eds), vol.5, Acad Press, (1957).

(6) BOND, Bell system techn. journal 22 p.1-72 (1943)

(7) J.R. DRABBLE, Proc. Phys. Soc. (London) 71, 430, (1958) et 72, 380,(1958)

(8) C.KITTEL, Introduction to Solid State Physics, IIIe Ed, New-York (1967) J. Wiley and Sons, Ed.

(9) C. HERRING, J. of Applied Physics, 31 (11), p.1939 (1960)

(10) P.T. LANDSBERG, Proc. Phys. Soc. (London) 71, p.69 (1958)

(11) B. UEMURA and M. INOUE, J. of the physical society of Japan, (13) (4), p. 377 (1958)

(12) D.K.C. MAC DONALD, Nature 163 p.637 (1949)

(13) E.H. SONDHEIMER, Nature 164, p.920 (1949)

(14) A.N. GERRITSEN, Physica 18, p. 877 (1952) ; 19, p.61 (1953)

(15) P. DELHAES, Chemistry and Physics of Carbon, vol. 7. New-York (1971) Philip.L.Walker, Ed.

(16) Y. TOYOZAWA, J. Of The Phys. Soc. Of Japan 17, p.986, (1962).

(17) S. ASKENAZY, J. LEOTIN, J.P.ULMET, A. LAURENT et L. HOLAN, Physics Letters 29 A(1) p.9 (1969)

(18) H. FRITZSCH and K. LARK-MOROVITZ, Phys. Rev. 99, p.400 (1955).

(19) S.F. WOODS and C.Y. CHEN, Phys. Rev. 135, p 1462 (1964)

(20) Y. KATAYANA, S. TANAYA, Phys. Rev. 153 (3), p.873 (1967)

(21) S. TANAKA, K. TAKITA and K. UCHINOKURA - XIth Int. Conf. on low temp. Physics, p.1292, (St Andrews 1968).

(22) W. SASAKI, J. of the Phys. Soc. of Japan 21, p. 543 (1966).

(23) M. BALANSKI and A. GEISMAR, J. of the Phys. Soc Japan 21, p. 554 (1966)

(24) M. HALBO and R.J. SLADEK, Phys. Rev. 173, p.796 (1968)

(25) A.V. MATVEENKO, R.V. PARFENEV, and S.S. SMALYT, Soviet Physics - Semiconductors 4 (1), p. 152 (1970).

(26) S. MROZOWSKI and A. CHABERSKI - Phys. Rev. 104. p.74 (1956)

(27) L.C.F. BLACKMAN, G. SAUNDERS, A.R. UBBELOHDE, Proceedings of the Physical Society, 73, p. 1048 (1961).

(28) C.A. KLEIN, Review of Modern Physics, 34, p.56 (1962)

(29) C.A. KLEIN, J. Of Applied Physics, 33, p. 3338 (1962) and Proc. 5 th Carbon Conference (Penn State 1961), vol.2, Pergamon Press, New-York (1963) p.11.

(30) S. GROMB, J. de Chimie Physique, p.864 (1964)

(31) D.E. SOULE, Phys. Review 112, p.698 (1958)

(32) I.L. SPAIN, A.R. UBBELOHDE and D.A. YOUNG, Philosophical transactions of the Royal Soc. of London, A 262, p.345 (1967)

(33) J.W. Mc CLURE and W.J. SPRY, Phys. Rev. 165, p.809 (1968)

(34) K. TAKEYA and K. YAZAWA, J. Phys. Soc. Japan, 19, p. 138 (1964) and Physical Review Letters, 15 (3), p.110 (1965)

(35) G. BENFORD, Physics Letters 28A, p.54 (1968)

(36) K. YAZAWA, Proceedings of the first biennal Cornell conference on Engineering applications of electronics phenomena, p.65 (1967).

(37) J.V. ZANCHETTA, P. BELOUGNE et H. GASPAROUX, Abstract E.P 11 9th Conference on carbon (Boston 1969)

(38) J.W. Mac CLURE, IBM Journal of Research and Developpement 8, p.255 (1964)

(39) Y. YAZAWA, J. de chimie Physique (XVIIIeme réunion de la Société de Chimie Physique) p.149 (1969)

(40) Y. UEMURA and M. INOUE, J. of Phys. Soc. of Japan 13, p.382 (1958)

(41) G.H. KINCHIN, Proceeding of the Royal Society 217, p.9 (1953)

(42) S. FUJITA, Carbon 6, (5) p.746 (1968)

(43) Y. HISHIYAMA, Abstract EP 12,9th Carbon Conference (Boston 1969).

(44) P. BELOUGNE, Thèse de 3ème cycle, Bordeaux(1969)

(45) D.C. PEARCE, R.M. WASILIK and D.A. NEEPER, Int. Conf. on Low temperature physics (colombus), vol 2, p 736 (1964).

(46) H. GASPAROUX, A. PACAULT, et E. POQUET, Carbon vol.3 p.65, Pergamon Press (1965).

(47) D.B. RICHARD, L.R. EDWARDS and S. LEGVOLD, Journal of Applied Physics vol 40, n°9, p 3836 (1969).

(48) Elisabeth POQUET, Thèse d'Etat, Bordeaux (1963)

(49) H. GASPAROUX et P. DELHAES, (communication privée.

(50) J.W. Mc CLURE, Phys. Rev. 112, 715 (1958).

(51) C.A. KLEIN, Physics and Chemistry of Carbons II p.225, Philip L.Walker ed.

(52) D.A. YOUNG Carbon 6, 135 (1968)

(53) A. MARCHAND, Les Carbones, vol.I. Masson, Paris 1965, p 232

(54) I. L. SPAIN, J. Chem. Phys. 52, 2763 (1970)

(55) C.A. KLEIN Technical Report R-58, Research Division, Raytheon Company (1961)

(56) H.WEISS, Semi-conductors and semi-metals (R.K Williardson and A.C. Beer, eds), vol.I, Acad. Press, New York (1966) p.315.

(57) P. de KEPPER, Travaux en cours. CRPP, 33- Talence France

(58) L. GORDY and H. FRITZSCHE, Journal of Applied Physics p3456 (1970)

(59) N.F. MOTT, Advan. Phys. 16, 49 (1967)

(60) M.H. COHEN, Journal of Non-Crystalline solids 4 p 391-409 (1970)

(61) F. CARMONA, Thèse 3ème Cycle Bordeaux (1970)

(62) F.T. HEDGCOCK and T.W. RAUDORF, Solid state communications 8 p.1819,(1970) Pergamon Press.

Vu et approuvé

Bordeaux, le 1971

Pour le Président

Le Premier Vice Président

M. RIMPAULT